



Capacités des réacteurs hybrides au plomb pour la production d'énergie et l'incinération avec multirecyclage des combustibles. Evolution des paramètres physiques - Radiotoxicites induites

Sylvain David

► To cite this version:

Sylvain David. Capacités des réacteurs hybrides au plomb pour la production d'énergie et l'incinération avec multirecyclage des combustibles. Evolution des paramètres physiques - Radiotoxicites induites. Physique des Hautes Energies - Expérience [hep-ex]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 1999. Français. NNT: . tel-00001403

HAL Id: tel-00001403

<https://theses.hal.science/tel-00001403>

Submitted on 13 Jun 2002

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THESE

présentée par

Sylvain DAVID

pour obtenir le titre de

Docteur de l'Université Joseph Fourier - Grenoble I

(Arrêtés ministériels du 5 juillet 1984 et du 30 mars 1992)

Spécialité : Physique

**Capacités des réacteurs hybrides au plomb pour la production
d'énergie et l'incinération avec multirecyclage des combustibles
Evolution des paramètres physiques
Radiotoxicités induites**

Date de soutenance: 26 Mars 1999

Composition du jury :

H. FLOCARD	Président
J.P. SCHAPIRA	Rapporteur
M. DELPECH	Rapporteur
D. HEUER	Directeur de thèse
J.M. LOISEAUX	
J.B. THOMAS	
D. GUILLEMAUD-MUELLER	

Thèse préparée au sein de l'Institut des Sciences Nucléaires.

53, Avenue des Martyrs. 38026 Grenoble Cedex.

Remerciements

Je souhaiterais tout d’abord remercier Monsieur Joël CHAUVIN, directeur de l’Institut des Sciences Nucléaires de Grenoble, pour m’avoir accueilli dans son laboratoire durant mes trois années de doctorat, ainsi que Jean-Marie LOISEAUX qui m’a permis d’effectuer ma thèse dans le groupe “Réacteurs Hybrides”. Cette thèse s’est déroulée sous la direction de Daniel HEUER et Alain GIORNI, je les remercie pour leur encadrement et leur soutien.

Je souhaiterais également remercier Monsieur Hubert FLOCARD d’avoir accepté de présider le jury de cette thèse, Messieurs Jean-Paul SCHAPIRA et Marc DELPECH, pour avoir accepté d’être rapporteur et pour les critiques et remarques constructives qu’ils ont pu me faire. Je remercie également Monsieur Jean-Baptiste THOMAS et Madame Dominique GUILLEMAUD-MUELLER, qui ont accepté de faire partie du jury.

Le sujet de ma thèse s’est dessiné au fur et à mesure, au gré des discussions et des interrogations régulières, je souhaiterais exprimer ma gratitude aux principaux acteurs de ces échanges, Jean-Marie LOISEAUX, Daniel HEUER et Hervé NIFENECKER.

Que serais-je devenu sans Maria-Ester BRANDAN ? Son aide me fut d’un immense secours, je la remercie sincèrement pour sa disponibilité et sa participation active aux discussions concernant l’orientation de mon travail.

Je remercie également Monsieur Jean-Paul SCHAPIRA, pour l’intérêt qu’il a porté à mon sujet de thèse, ses commentaires avertis et le programme de calcul de radiotoxicité qu’il nous a fourni nous ont permis d’avancer rapidement et de finaliser les résultats que nous avons obtenus.

Je souhaiterais remercier les autres membres du groupe “Réacteurs Hybrides”, avec qui j’ai eu plaisir à travailler pendant trois années ; Roger BRISSOT, Olivier MEPLAN, Jean-Bernard VIANO, Bernard BOYER, Eric BELLE, Luc PERROT, Philippe WACHTARCZYK et Denis KERDRAON. Un remerciement spécial pour Annick “mip-mip” BILLEBAUD (qui revient du Brésil) pour ses conseils avisés et des relectures indispensables.

Christine GONDRAND, Jean-Claude DURAND, Pascal MEYRAND, Gérard TUR et Maurice GEYNET m’ont été d’une aide précieuse pour tous mes problèmes informatiques, je leur en suis reconnaissant. Je remercie vivement Michèle BLANC pour sa disponibilité et son attention.

Je souhaiterais également remercier quelques personnes que j’ai pu croiser durant ces trois années, Jean-Pierre LONGEQUEUE, Jean-François CAVAINAC, Pierre DESESQUELLES, John COLE, Eric LIATARD, Mikelkel CHARVET et Frederic ATTALE.

Enfin (et surtout) merci à mes parents pour leur soutien sans faille.

Table des matières

1	Contexte énergétique et nucléaire	7
1.1	Contexte énergétique général	7
1.1.1	Consommation d'énergie dans le monde	7
1.1.2	Réserves	8
1.1.3	Effets sur l'environnement	9
1.2	Les déchets nucléaires	10
1.2.1	La gestion des déchets nucléaires en France	13
1.3	Historique des systèmes hybrides	14
1.3.1	Principe de base	14
1.3.2	Historique [1]	14
1.3.3	Les premières expériences, validation des concepts	15
1.4	Les expériences actuelles	15
1.4.1	les données nucléaires	15
1.4.2	Expériences sur réacteurs sous-critiques	16
1.5	Le contexte des études	16
2	Quelques éléments de physique des systèmes sous-critiques	19
2.1	Rappel de fonctionnement d'un réacteur critique [2, 3, 4]	19
2.1.1	Combustibles utilisés	19
2.1.2	Retraitement, surgénération	20
2.1.3	Réaction en chaîne	21
2.1.4	Pilotage du réacteur, neutrons retardés	21
2.1.5	Coefficients de vide et de température	22
2.2	Propriétés neutroniques d'un réacteur hybride	24
2.2.1	Retour sur la définition de k_{eff}	24
2.2.2	Facteur de multiplication k_i	26
2.2.3	Facteur de multiplication global k_s	26
2.2.4	Gain du système hybride	27

2.2.5	Comparaisons des trois facteurs de multiplication k_{eff} , k_i et k_s	29
2.3	Les observables expérimentales d'un système sous-critique	31
2.3.1	Comportement temporel d'un réacteur sous-critique	32
2.4	Préparations des expériences MUSE	33
2.4.1	Description du réacteur expérimental Masurca [5]	33
2.4.2	Simulations de MASURCA	34
2.4.3	Evolution du spectre en énergie en fonction du temps	42
2.5	Quelques résultats de l'expérience MUSE 3	42
2.5.1	Le générateur de neutrons	43
2.5.2	Mesures des spectres en temps	45
2.5.3	Spectres en énergie	47
2.5.4	Conclusions sur l'expériences MUSE 3	49
2.6	Les avantages d'un système hybride	51
2.6.1	Souplesse de pilotage	51
2.6.2	Tout type de combustible utilisable	51
2.6.3	Economie de neutrons	52
2.6.4	Différentes utilisations d'un réacteur hybride	53
3	Description des simulations, étude statistique	55
3.1	Code Monte Carlo, MCNP	55
3.1.1	Principe de la méthode Monte Carlo	55
3.1.2	MCNP	57
3.2	Choix de la géométrie	57
3.2.1	Géométrie générale	57
3.2.2	Cible de plomb et source de spallation	57
3.2.3	Cœur	59
3.2.4	Réflecteur	61
3.3	Traitement de l'évolution	62
3.3.1	Définitions	62
3.3.2	Traitement des produits de fission	63
3.3.3	Traitement de l'évolution des matériaux	66
3.3.4	Couplage du code MCNP à un programme d'évolution	67
3.4	Etude statistique	69
3.4.1	Description du problème	69
3.4.2	Propagation des erreurs	70
3.4.3	Un cas défavorable	72
3.4.4	Fluctuations statistiques sur le calcul de k_s	73

3.5	Calcul de la radiotoxicité d'un stock de noyaux	75
3.5.1	Facteurs de dose [6]	75
3.5.2	Calcul de l'évolution de la radiotoxicité	76
3.5.3	Les différentes représentations possibles	77
4	Analyse comparative des filières ^{nat}U / Pu et $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$	79
4.1	Introduction	79
4.2	Définition des caractéristiques initiales de réacteurs dédiés à la production d'énergie [7]	81
4.2.1	Recherche d'un point de fonctionnement	81
4.2.2	Points de départ, paramétrisation de k_s initial	81
4.2.3	Recherche d'une réactivité stable	84
4.2.4	Etude par simulation	87
4.2.5	Caractéristiques initiales	87
4.3	Description comparative des deux filières principales envisagées pour la production d'énergie : ^{232}Th / ^{233}U et ^{nat}U / Pu	93
4.3.1	Sections efficaces moyennes	93
4.3.2	Remarques	95
4.3.3	Recyclages	97
4.3.4	Evolution des caractéristiques principales du réacteur	99
4.4	Comparaison des radiotoxicités induites	108
4.4.1	Recyclage type 1	108
4.4.2	Recyclage de type 2	111
5	Etude des transitions possibles vers la filière thorium	115
5.1	Considérations générales	115
5.2	Thorium seul	116
5.3	Utilisation d'uranium enrichi	119
5.4	Utilisation du plutonium issu des réacteurs actuels	127
5.5	Comparaison globale des filières étudiées, discussion	131
5.5.1	Radiotoxicité des actinides perdus à chaque retraitement	131
5.5.2	Radiotoxicité des inventaires	134
6	Incinération d'actinides dans des réacteurs hybrides à spectre rapide	137
6.1	Considérations générales	137
6.2	Incinération de combustibles usés par des réacteurs hybrides refroidis au plomb .	138
6.2.1	Description générale des simulations	138
6.2.2	Composition du cœur	139

6.3	Description des résultats obtenus	142
6.3.1	Caractéristiques initiales	143
6.3.2	Comportement du réacteur au cours du temps	143

Introduction

L'énergie nucléaire connaît à l'heure actuelle une phase de transition riche en rebondissements politiques. Certains réacteurs construits il y a quelques dizaines d'années devront s'arrêter d'ici une dizaine d'année et leur remplacement soulève diverses questions.

Les déchets produits par les centrales nucléaires sont au cœur de la plupart des débats concernant l'avenir de ce type d'énergie. Dans une période où des décisions cruciales pour l'avenir de la production d'énergie en général doivent être prises, les scientifiques doivent apporter un éclairage sur les possibilités qui s'offrent à la société.

Le concept des réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateur (réacteurs hybrides), relancé au début de années 90 par C. Rubbia et C.D. Bowman, permet d'ouvrir des voies nouvelles quant à la gestion des déchets nucléaires, qu'il s'agisse de la destruction des déchets actuels ou de la production d'une énergie nucléaire plus propre, notamment en utilisant le cycle du thorium. Ce concept repose sur le couplage entre un accélérateur de particules et un réacteur nucléaire sous-critique.

Dans un premier temps, nous rappelons dans ce travail les principales caractéristiques du problème énergétique mondial, et décrivons plus précisément les problèmes liés à la production de déchets nucléaires.

Le deuxième chapitre est consacré à la physique des réacteurs sous-critiques. Des études par simulation permettent de bien comprendre la façon dont se multiplient les neutrons dans un cœur de réacteur sous-critique. Nous tenterons de faire le lien entre cette approche par simulation et les résultats expérimentaux que nous avons obtenus lors de l'expérience MUSE 3 réalisée à Cadarache sur le réacteur expérimental MASURCA, concernant l'étude dynamique d'un système sous-critique soumis à une source externe de neutrons pulsée. Ces deux approches permettront de comprendre les avantages liés à la sous-criticité du système hybride.

Depuis quelques années, deux utilisations possibles d'un réacteur hybride semblent s'affronter : la production d'énergie et l'incinération d'actinides en complément de la filière actuelle. Il nous est apparu qu'un débat sur la gestion actuelle des déchets nucléaires ne peut se passer de prendre en compte l'avenir de l'énergie nucléaire, puisque certains déchets actuels peuvent être éventuellement considérés comme matière fissile principale ou d'appoint dans l'avenir. C'est pourquoi il nous a paru urgent d'étudier les filières innovantes qui peuvent assurer un futur

durable pour l'énergie nucléaire.

L'intérêt porté par la communauté scientifique aux réacteurs hybrides et tous les avantages qu'ils apportent (sûreté optimale, souplesse de pilotage, pas de contrainte sur les combustibles utilisés, etc...) nous ont donné l'idée de vérifier s'il était possible d'utiliser une filière durable avec ce type de réacteur, comprenant la régénération de la matière fissile et le multirecyclage du combustible (deux types seront étudiés). Nous envisagerons, dans cette étude, des réacteurs hybrides à neutrons rapides refroidis au plomb. Pour mener ces études, nous avons mis au point une méthode de simulation basée sur le couplage d'un code Monte Carlo (MCNP) et d'un programme calculant l'évolution du combustible. La description de cette méthode fait l'objet du chapitre 3.

Les deux seuls noyaux fertiles naturels étant l'uranium (^{238}U) et le thorium (^{232}Th), nous avons entrepris une analyse comparative de ces deux filières. Cette étude inclut le contrôle de l'évolution de tous les paramètres physiques des réacteurs sur un siècle d'utilisation (réactivité, flux, composition isotopique, sections efficaces moyennes, etc...) et la comparaison détaillée des radiotoxicités induites par le retraitement périodique du combustible.

Les avantages liés à l'utilisation de la filière thorium, (chapitre 4) en terme de production d'actinides mineurs lourds (Am, Cm) et de radiotoxicité générée, nous inciteront à étudier précisément la possibilité de démarrer cette filière, fondée sur un élément fissile qui n'existe pas à l'état naturel (^{233}U), à partir de combustibles dont on dispose actuellement (minerai d'uranium et plutonium fourni par les réacteurs actuels principalement). L'étude de ces différentes phases de transition sera effectuée et discutée au chapitre 5.

Une gestion prévisionnelle et comparative des déchets selon les filières doit aussi prendre en compte les radiotoxicités des inventaires et leur possible réduction par incinération, en cas d'arrêt du nucléaire. A cette fin, une approche de l'incinération de certains corps à vie longue présents dans les combustibles usés des filières uranium et thorium sera envisagée, utilisant des réacteurs hybrides à spectre rapide refroidis au plomb. Nous décrirons les capacités d'un tel système à incinérer les actinides. Les résultats encourageants obtenus devront donner lieu à d'autres études afin d'optimiser la capacité d'incinération du système étudié.

Chapitre 1

Contexte énergétique et nucléaire

Le contexte des études menées dans ce travail est celui de la production d'énergie nucléaire et de la gestion des déchets générés par cette industrie. Une discussion sur le rôle futur de l'énergie nucléaire demande une vision globale du contexte énergétique mondial. Nous présentons dans ce chapitre d'introduction une description succincte des principales caractéristiques du problème énergétique mondial actuel. Une partie plus détaillée sera consacrée au contexte nucléaire.

1.1 Contexte énergétique général

1.1.1 Consommation d'énergie dans le monde

Nous pouvons rappeler dans un premier temps les contributions des différentes sources d'énergie utilisées dans le monde. La proportion de chaque type d'énergie est indiquée dans le tableau 1.1 [8] ainsi que les valeurs absolues exprimées en "tonne équivalent pétrole"

Type d'énergie	%	G Tep
pétrole	31.8	2.8
Charbon	26.1	2.3
Gaz	19.3	1.7
Biomasse	10.2	0.9
Hydraulique	5.7	0.5
Nucléaire	4.5	0.4
Energies renouvelables	2.3	0.2
Total	100	8.8

TAB. 1.1 – *Production d'énergie dans le monde en pourcentage et en "Giga Tonnes équivalent pétrole" (G Tep)*

On remarque immédiatement que l'énergie nucléaire ne concerne qu'une faible part de la

production énergétique mondiale ; en effet, l'énergie nucléaire n'est utilisée que pour la production d'électricité, ce qui ne représente que le tiers de la consommation totale d'énergie. De plus, de nombreux pays n'utilisent que très peu ce type de production d'énergie. La France tient une place à part avec près de 80% de son électricité produite par des réacteurs nucléaires. Cette situation nucléaire française ne doit pas faire oublier que globalement, l'énergie nucléaire est peu utilisée au niveau mondial.

1.1.2 Réserves

Une question immédiate que l'on se pose à propos de chaque type d'énergie est celle des réserves. Alors que les énergies renouvelables permettent de produire de l'énergie sans consommer de matière épuisable, la plupart des combustibles utilisés actuellement (pétrole, charbon, uranium, etc...) sont extraits de gisements qui ne sont pas infinis.

L'expérience montre que les prévisions des ressources sont à prendre avec prudence ; les progrès technologiques d'extraction ou de prospection viennent souvent influencer fortement les évaluations des gisements. Cependant, la plupart des études prédisent un manque de ressources d'ici quelques dizaines à quelques centaines d'années. Le tableau 1.2 montre le stock de chaque source d'énergie en nombre d'années d'exploitation [8] (au taux de consommation et au coût d'extraction actuels).

type d'énergie	Nombre d'années d'exploitation
pétrole	40
charbon	200
gaz	60
nucléaire traditionnel	200

TAB. 1.2 – *Réserves en énergie fossile et nucléaire exprimées en années d'exploitation au taux actuel de consommation*

Notons que l'uranium contenu dans les océans n'est pas pris en compte dans ce tableau et représente d'énormes ressources dont l'exploitation nécessiterait un développement technologique important [9]. Il apparaît clairement que le problème des ressources se posera à plus ou moins long terme. Si l'on considère que les énergies renouvelables ne seront pas rentables avant quelques décennies, il devient urgent de proposer des formes d'énergie d'avenir, utilisables à moyen terme, afin de permettre une transition continue entre les énergies actuelles qui tendent à s'épuiser, et des énergies futures qui demandent une forte évolution technologique.

Dans les prévisions du tableau 1.2, la consommation a été supposée constante, égale au taux actuel. On peut bien entendu se demander si ce paramètre risque ou non de fortement évoluer pendant les décennies à venir. Pour tenter de répondre à cette question il faut tenir compte des

deux composantes de ce taux de consommation total d'énergie, à savoir le taux de consommation par habitant, et le nombre total d'habitants. La première des composantes peut fortement évoluer dans un sens où dans l'autre ; on peut imaginer par exemple une meilleure utilisation de l'énergie qui conduirait à des économies significatives sur la consommation, notamment aux Etats-Unis où la consommation par habitant est environ le double de celle des autres pays industrialisés. Inversement, un fort développement de pays encore peu industrialisés pourrait conduire à une forte augmentation de la consommation d'énergie par habitant. L'exemple de la Chine est incontournable : la consommation d'énergie par habitant est actuellement près de dix fois inférieure à celle des américains. Etant donné le nombre très élevé d'habitants et le développement industriel engagé par ce pays, on peut s'attendre à une augmentation significative de son taux de consommation d'énergie, avec une forte répercussion sur la consommation mondiale.

Les études concernant l'évolution de la population sur terre montrent que les prévisions sont très délicates ; certains facteurs comme le taux de fertilité influencent énormément ces prévisions mais sont très difficiles à évaluer. Globalement, on pense que la population augmentera encore pendant quelques années, les scénarios dépassant 20 ans étant difficilement exploitables.

Même si on s'attend à une augmentation régulière de la consommation mondiale d'énergie, il faut rester prudent sur ce type de prévision. Néanmoins cette prudence ne remet absolument pas en cause la recherche d'une nouvelle source d'énergie du futur dont la nécessité apparaîtra de toute façon, seul le délai peut être plus ou moins long selon l'évolution des facteurs que l'on vient d'exposer.

Le nucléaire peut faire partie des propositions, si l'on envisage une meilleure utilisation du combustible naturel limité lui aussi ; une filière génératrice de son propre combustible optimiserait l'utilisation du minerai dont on dispose et permettrait de multiplier par un facteur 100 environ les temps d'exploitation des gisements actuels. Cette pérennité du nucléaire n'est bien évidemment pas la seule condition pour envisager la poursuite du nucléaire à long terme ; ce type d'énergie doit répondre à d'autres critères que nous tenterons d'exposer dans cette première partie.

1.1.3 Effets sur l'environnement

Toute énergie quelle qu'elle soit a un effet sur l'environnement, que ce soit sous forme de déchets (énergie nucléaire, pétrole, gaz, etc...) ou par modification du biotope (énergies hydraulique, éolienne, solaire, etc...). Il est extrêmement difficile de quantifier l'impact sur l'environnement de chaque source d'énergie, la plupart des effets sur l'environnement n'étant pas directement mesurables, ou ne se manifestant qu'après une longue période. Cependant, on connaît dans la plupart des cas les polluants qui posent les plus gros problèmes. Pour les énergies fossiles (pétrole, charbon, etc...) ce sont les gaz à effet de serre qui génèrent les nuisances les plus importantes, principalement le dioxyde de carbone, le dioxyde de soufre et le dioxyde d'azote. L'énergie nu-

cléaire ne produit pas de tels gaz, mais génèrent des déchets radioactifs à vie longue qui posent des problèmes de nature différente. L'étude de la production et de la gestion des déchets de l'industrie nucléaire sont les grandes motivations de ce travail de thèse, nous allons donc tenter de clarifier la situation concernant les déchets nucléaires actuellement produits et d'expliquer en quoi les systèmes hybrides sont intéressants pour leur gestion.

1.2 Les déchets nucléaires

Une gestion sérieuse et efficace des déchets nucléaires apparaît comme une priorité si on envisage de poursuivre ce type d'énergie à long terme. Il convient, dans un premier temps, de différencier les types de déchets issus d'un réacteur nucléaire, et de comparer leurs radiotoxicités afin de savoir à quel type il convient de s'intéresser en premier lieu.

On peut distinguer quatre catégories de déchets nucléaires radioactifs :

- Les produits de fission (PF) de durée de vie courte ou moyenne (principalement ^{90}Sr (30 ans) et ^{137}Cs 29 ans)) :

Ces déchets sont principalement des émetteurs β hautement actifs du fait de leur courte période. Leur stockage est donc délicat mais limité dans le temps (quelques dizaines à quelques centaines d'années). Leur haute activité rend difficile leur manipulation, et donc leur éventuelle transmutation. On pense aujourd'hui que la meilleure façon de gérer ces déchets est de les stocker et de les surveiller pendant une période admissible.

- Les produits de fission à vie longue (tableau 1.3) :

Tout comme les produits de fission à durée de vie courte ou moyenne, ce sont principalement des émetteurs β . Leur durée de vie peut aller jusqu'à des millions d'années. Leur radiotoxicité à long terme est environ 100 fois inférieure à celle des actinides produits par un réacteur, cependant, ces noyaux sont très labiles et constituent un important problème du point de vue du risque résiduel (diffusion importante à travers les parois des containers). Une solution pourrait être la transmutation vers des noyaux stables par capture neutronique (n, γ).

Noyau	^{79}Se	^{90}Zr	^{99}Tc	^{107}Pd	^{126}Sn	^{129}I	^{135}Cs
Période (années)	$7 \cdot 10^4$	$1.5 \cdot 10^6$	$2.1 \cdot 10^5$	$6.5 \cdot 10^6$	$1 \cdot 10^5$	$1.6 \cdot 10^7$	$2 \cdot 10^6$
Production (kg/an)	0.11	15.5	17.7	4.4	0.44	3.9	7.7

TAB. 1.3 – *Liste des principaux produits de fission à vie longue, ainsi que leur période de décroissance et leur taux de production actuel par un réacteur REP de 1 GWe [10]*

Les réacteurs hybrides offrent des possibilités intéressantes pour traiter la plupart de ces

déchets par transmutation, ce qui permettrait de réduire considérablement leur radiotoxicité avant leur stockage inévitable.

- Les actinides perdus au retraitement (Th, Pa, U, Np, Pu, Am, Cm):

Dans le scénario français de retraitement du combustible, une partie du plutonium de première génération (que l'on notera simplement Pu par la suite) issu d'un réacteur à uranium enrichi, est recyclé (combustible MOX), alors que les actinides mineurs (Np, Am et Cm principalement) ne sont pas séparés des produits de fission. Ces noyaux lourds représentent une radiotoxicité induite élevée. Ce sont principalement des émetteurs α (donc 100 fois plus radiotoxiques environ que les produits de fission) et leur durée de vie peut aller jusqu'à plusieurs centaines de milliers d'années. Les actinides de courte période ne peuvent pas être considérés comme des produits de fission à courte période que l'on pourrait stocker et surveiller pendant des temps raisonnables puisque dans la plupart des cas, il existe au moins un descendant de durée de vie longue. En règle général, ces noyaux sont beaucoup moins labiles que les produits de fission et n'interviennent que du point de vue du risque potentiel. Cependant, leur radioactivité α est une source de chaleur qui peut influencer significativement la diffusion des produits de fission à vie longue à travers les parois des containers.

La France procède à un recyclage du plutonium, d'autres pays, envisagent d'enfouir leurs combustibles après un seul cycle d'utilisation en réacteur ; c'est le cas notamment des Etats Unis qui étudie sérieusement si le site de Yucca Mountain pourrait être utilisé à ces fins. Ces deux types de gestion des stocks de combustible en fin de cycle ne peuvent cohabiter avec une poursuite à long terme de l'énergie nucléaire, du fait des stocks trop importants de combustible usé à stocker, et du gaspillage du minerai naturel d'uranium. Dans le cas d'un multirecyclage du combustible (comme nous l'envisagerons dans ce travail), il existera une part des actinides qui ne pourra être séparée des produits de fission. Ces "pertes au retraitement" dépendent évidemment du type de recyclage envisagé et peuvent jouer un rôle plus ou moins important en terme de radiotoxicité.

- Dans le cas d'un scénario comprenant le multirecyclage du combustible, l'inventaire des réacteurs ne doit être considéré comme déchet uniquement dans le cas de l'arrêt de la filière. Ces inventaires sont constitués des mêmes actinides perdus au retraitement précédemment cités mais leur concentration est plus importante. De plus il ne s'agit pas de noyaux dilués que l'on ne sait pas extraire, mais d'un stock de combustible usé que l'on peut envisager de retraiter ; les réacteurs hybrides peuvent alors être une possibilité intéressante.

Le tableau 1.4 [11] permet d'avoir une idée des quantités de ces types de déchets produits par

un réacteur français à eau sous pression (REP) d'une puissance de 1 GWe, fonctionnant pendant un an ; en 1995, le parc électronucléaire se composait de 56 tranches installées représentant une puissance totale d'environ 60 GWe.

Noyau	Masse initiale (kg)	Masse finale (kg)
^{235}U	954	280
^{236}U		111
^{238}U	26328	25655
^{239}Pu		156
Total plutonium		266
Actinides mineurs (AM)		20
PF vie courte et moyenne		43
PF vie longue		63
total PF		946

TAB. 1.4 – *Inventaire d'un REP au bout d'un an de fonctionnement à 1 GWe [11] (soit environ 9 TWh)*

Les volumes à traiter ne sont pas représentatifs de la radiotoxicité induite par ces différents déchets, du fait de leurs différents types de radioactivité. C'est pourquoi il est nécessaire de comparer les radiotoxicités induites afin de déterminer quel type de déchet doit être étudié en priorité. La radiotoxicité est calculée en tenant compte des dégâts radiologiques sur le corps humains en cas d'ingestion ; nous reviendrons sur une définition plus précise de la radiotoxicité ultérieurement. La figure 1.2 représente l'évolution de la radiotoxicité d'un combustible usé de REP en distinguant les produits de fission des actinides. La courbe correspondant aux produits de fission montre la contribution des deux types de produits de fission énoncés précédemment : jusqu'à quelques centaines d'années, ce sont les produits de fission à vie courte ou moyenne qui dominent la radiotoxicité, ensuite, les produits de fission à vie longue deviennent les plus nocifs. Si on compare maintenant les radiotoxicités induites par les produits de fission et par les actinides, il apparaît que passé quelques dizaines d'années, les actinides sont nettement plus actifs sur la période suivante, s'étendant jusqu'à dix millions d'années.

Il ressort de cette rapide comparaison qu'une gestion efficace des déchets nucléaires passe par une gestion efficace des actinides, soit perdus au retraitement, soit présents dans l'inventaire final d'un réacteur en fin de cycle (scénario d'arrêt du nucléaire). Nous nous focaliserons donc dans un premier temps sur les actinides produits par les différentes filières qui seront étudiées, ainsi qu'à leur incinération en fin de cycle.

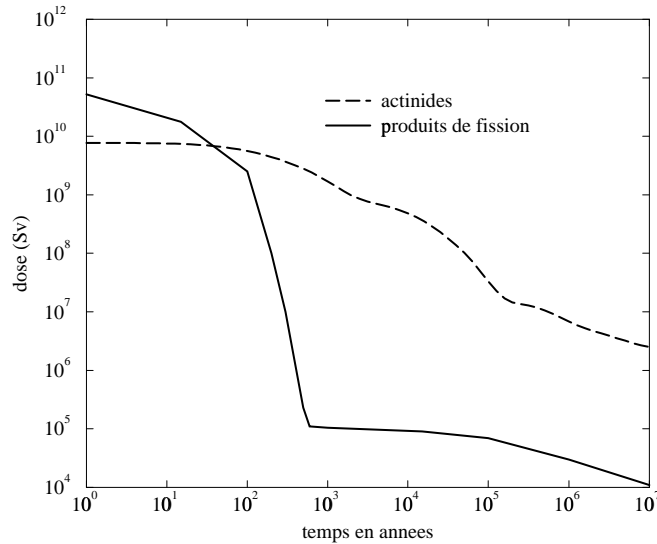


FIG. 1.1 – Radiotoxicité par ingestion du stock de combustible sortant d'un REP après une énergie fournie de 3.37 GWe.an [12]

1.2.1 La gestion des déchets nucléaires en France

Les problèmes soulevés dans les années 80 par le stockage des déchets nucléaires sont à l'origine de la loi du 30 décembre 1991. Cette loi stipule que le gouvernement doit proposer au parlement d'ici 2006 des solutions efficaces quant à la gestion de ces déchets nucléaires. C'est dans ce cadre qu'a été créé le groupement de recherche GEDEON (Gestion des DEchets par des Options Nouvelles) entre le CEA, le CNRS, EDF et maintenant FRAMATOME.

L'objectif de ce groupement de recherche est d'explorer les potentialités que peuvent offrir les systèmes hybrides pour gérer les déchets nucléaires, soit par incinération (fission des noyaux lourds) soit par transmutation (capture (n, γ) sur les produits de fission radioactifs). Sept grands axes de recherche ont été déterminés au sein de GEDEON :

- Physique de la cible de spallation
- Physico-chimie et thermohydraulique des métaux lourds liquides
- Etudes des dommages aux matériaux de structure dûs au faisceau ou aux neutrons
- Données nucléaires
- Etude du cycle thorium
- Accélérateurs de haute intensité

- Etudes de systèmes

Le travail exposé ici participe à plusieurs de ces domaines ; la physique des systèmes sous-critiques, le cycle thorium et plus généralement l'étude de systèmes.

1.3 Historique des systèmes hybrides

1.3.1 Principe de base

Le principe d'un système hybride est de coupler un accélérateur de protons à un réacteur nucléaire sous-critique dans lequel un neutron produit un nombre fini de fissions. Contrairement à un réacteur critique, un tel système a besoin d'être alimenté en permanence par une source externe de neutrons. Ces neutrons nécessaires au fonctionnement du réacteur sont produits par réaction de spallation des protons accélérés avec les noyaux d'une cible située au centre du réacteur. Une présentation détaillée du fonctionnement d'un tel système sera faite au chapitre suivant, nous tentons dans cette introduction de retracer brièvement l'histoire de ces réacteurs hybrides ainsi que les expériences clés qui l'ont jalonnée.

1.3.2 Historique [1]

L'ancêtre du concept du réacteur hybride est sans doute la proposition de W.B Lewis [13] qui consistait à coupler un accélérateur de protons à une cible de spallation entourée de thorium, dans le but de produire de l' ^{233}U (par capture (n,γ) sur le ^{232}Th), utilisable comme combustible dans la filière nucléaire canadienne fonctionnant à l'eau lourde (réacteurs type CANDU).

De nombreuses études étaient alors entreprises sur la production d' ^{233}U assisté par un accélérateur de particules [14, 15, 16].

Le concept de produire directement de l'énergie en couplant l'accélérateur à un réacteur nucléaire sous-critique a été étudié et développé dans les années 80 à Brookhaven par l'équipe de H. Takahashi. La première description précise de réacteur sous-critique piloté par accélérateur est proposée en 1992 par C. Bowman [17]. Ce système permettrait de produire de l'électricité tout en incinérant les stocks d'actinides issus des réacteurs américains. Le concept de réacteur sous-critique piloté par accélérateur développé par C.D. Bowman utilise un combustible liquide (sels fondus), circulant dans du graphite. Le spectre des neutrons est thermique, et le flux dans le cœur de l'ordre de $10^{16}\text{n/cm}^2/\text{s}$ (environ 100 fois plus important que dans un réacteur thermique classique).

En 1994, le professeur Carlo Rubbia propose son concept d'amplificateur d'énergie [18, 12], dédié à la production d'énergie. Le système utiliserait un combustible au thorium qui permettrait de réduire considérablement la production d'actinides mineurs. Une autre particularité est l'utilisation du plomb en tant que caloporteur et réflecteur, ainsi que la proposition de transmuter

des produits de fission à vie longue dans la couverture du réacteur.

Ces deux derniers projets ont sans nul doute marqué le début de nombreux programmes de recherche, que ce soit en Europe, ou aux Etats-Unis.

1.3.3 Les premières expériences, validation des concepts

Deux expériences ont été menées au CERN, dans le but de valider les deux concepts principaux du projet de C. Rubbia, d'une part la possibilité de produire de l'énergie à partir d'un accélérateur couplé à un réacteur sous-critique, et d'autre part, celle de transmuter des produits de fission à vie longue grâce à l'utilisation du plomb dans la zone réflectrice du réacteur. L'expérience FEAT (First Energy Amplifier Test) [19, 20] qui s'est déroulé en 1995, a mis en évidence le comportement du gain du système en fonction de l'énergie du faisceau de protons, et a permis de mesurer différents paramètres neutroniques du massif sous-critique comme la répartition spatiale de la source de spallation ou encore de dresser une cartographie détaillée du flux dans le cœur du réacteur. L'expérience TARC (Transmutation by Adiabatic Resonance Crossing) [21] s'est déroulée de 1995 à 1997, et a consisté d'une part, à étudier le comportement des neutrons dans un massif de plomb (cartographie du flux en fonction de l'énergie par exemple) et de valider les codes de simulation développés [22], et d'autre part, à mesurer les sections efficaces différentielles et intégrales de certains corps jouant un rôle important dans le domaine des réacteurs hybrides, comme certains actinides (^{232}Th , ^{233}U , etc...) ou certains produits de fission (^{99}Tc , ^{129}I , etc...) dont les sections efficaces sont connues mais encore peu précises.

1.4 Les expériences actuelles

1.4.1 les données nucléaires

Actuellement, de nombreux efforts sont faits pour obtenir des bases de données de bonne qualité afin de pouvoir utiliser au mieux les codes de simulation développés depuis des années, concernant notamment le transport de neutrons et les cascades intra-nucléaires intervenant dans la spallation.

En ce qui concerne les énergies inférieures à 20 MeV, différents codes déterministes ou Monte Carlo ont pu être validés. Cependant, les sections efficaces de certains noyaux importants sont encore peu précises. Des campagnes de mesures sont donc nécessaires pour améliorer les bases de données actuelles [23, 24]. D'autre part, des expériences sur la physique de la spallation [25] (énergies supérieures à 200 MeV) sont en cours et permettent de tester les différents modèles développés [26, 27].

Enfin, des campagnes de mesure de données neutroniques entre 20 MeV et 200 MeV sont menées en Europe [28, 24] afin d'améliorer le couplage entre les codes de hautes et basses énergies

1.4.2 Expériences sur réacteurs sous-critiques

Un autre type d'expérience concerne l'étude du comportement d'un réacteur sous-critique soumis à une source externe de neutrons. Une des premières expériences menées dans cette voie a été l'expérience FEAT au CERN. Actuellement les expériences MUSE (Multiplication Source Externe) menées à Cadarache auprès du réacteur maquette MASURCA (MAquette SURgénérateur CADarache) permettent d'approfondir notre compréhension de la physique des systèmes sous-critiques [5]. Les deux premières expériences ont consisté à coupler un cœur sous-critique à une source externe de neutrons (source de Californium) et à étudier le comportement du système en fonction de la position de la source sur l'axe du réacteur. Depuis 1997 et l'expérience MUSE 3, l'IN2P3 est devenu partenaire du CEA sur ce programme d'expérience. Une description détaillée de cette expérience, ainsi qu'une partie des résultats que nous avons obtenus seront faites au chapitre suivant. Actuellement, le programme se poursuit (MUSE 4 et 5 sont déjà définis) et va permettre d'étudier le comportement de nouveaux types de combustibles dans un réacteur sous-critique.

1.5 Le contexte des études

Après sa participation aux programmes expérimentaux FEAT et TARC réalisés au CERN, le groupe de Grenoble s'est engagé dans le programme MUSE à Cadarache en collaboration avec le CEA. Cette situation nouvelle nécessitait le développement d'une activité de simulation indépendante, afin de participer pleinement à la préparation et l'interprétation des expériences, à l'étude et à la conception de nouveaux systèmes ou encore aux études comparées de cycles de combustible. L'idée d'un projet de réacteur hybride de démonstration se faisait jour et le choix de sa taille était débattu.

Au début de ce travail, un débat semblait s'orienter sur le choix entre la production d'une énergie nucléaire plus propre (projet d'"Energy Amplifier" de C. Rubbia) et l'incinération de déchets produits par la filière actuelle (incinérateur à sel fondu de C.D. Bowman).

Notre travail s'est ainsi organisé en deux étapes, qui sont exposées dans les chapitres suivants :

- Une étude par simulation a permis de bien comprendre la manière dont les neutrons se multiplient dans un système sous-critique. Nous exposons les différences fondamentales existant avec le comportement neutronique d'un système critique, et décrivons les facteurs de multiplication utilisés dans le cas des cœurs sous-critiques. Ces études par simulation sont ensuite reliées aux résultats de l'expérience MUSE 3 concernant l'étude du comportement temporel d'un réacteur sous-critique soumis à une source pulsée de neutrons.

- Concernant la question d’une priorité “production d’énergie” ou “incinération de déchets”, il nous est apparu que les décisions sur la gestion de déchets nucléaires actuels ne pouvaient pas se prendre sans tenir compte du futur de l’énergie nucléaire, puisque certaines solutions peuvent conduire à utiliser les déchets, et notamment le plutonium, comme matière fissile principale ou d’appoint. C’est ainsi que nous avons été amenés à étudier dans un premier temps les deux filières à neutrons rapides qui permettent d’assurer cette durabilité en termes de réserves, à savoir ^{nat}U / Pu et ^{232}Th / ^{233}U , avec, pour cette dernière, les phases de transition possibles, le stock de matière fissile (^{233}U) n’étant pas disponible dans la nature.

Ces études prennent en compte les stocks d’actinides actuels issus principalement des réacteurs thermiques, et permettent de comparer les caractéristiques de toutes les filières utilisées dans les mêmes conditions.

Nous nous focalisons sur les actinides produits par chaque filière et étudions en particulier la radiotoxicité qu’ils génèrent à chaque recyclage du combustible. Deux types de recyclage sont envisagés, l’un correspondant aux capacités de séparation des usines de retraitement actuelles, l’autre, plus optimiste, nécessitant un nouveau développement technologique ; des études menées sur un procédé de séparation par pyrochimie permet d’envisager un tel retraitement d’ici quelques dizaines d’années.

L’utilisation d’un spectre de neutrons thermiques ne permettant pas de régénérer la matière fissile tout en assurant le maintien de la réactivité, nous choisissons donc d’étudier un type de réacteur à spectre neutronique rapide. Du fait de sa masse élevée, le plomb permet d’obtenir un spectre neutronique rapide dans le cœur. Sa faible section efficace de capture (n, γ) le rend très transparent aux neutrons. De plus, ses caractéristiques thermiques permettent d’envisager un très bon rendement au niveau des échangeurs thermiques. Enfin il peut être utilisé en tant que cible de spallation et permet de transmuter certains produits de fission à vie longue dans la zone réflectrice du réacteur (concept TARC (Transmutation By Adiabatic Resonance Crossing) [21, 32]). Nous utilisons donc dans nos simulations, le plomb comme cible de spallation, caloporteur et milieu réflecteur. La chimie du plomb pose encore à l’heure actuelle de sérieux problèmes étudiés par les spécialistes des matériaux. Le développement de matériaux de structure résistant à la corrosion chimique du plomb à haute température est envisageable d’ici quelques années.

Enfin, l’étude complète d’une filière nucléaire doit envisager l’arrêt éventuel du cycle du combustible et la gestion de l’inventaire final. Nous étudions donc la possibilité d’incinérer le contenu des combustibles usés des filières uranium et thorium dans des réacteurs sous-critiques. Ce type d’étude est relativement lié à l’étude de l’incinération du plutonium actuel et nécessite une comparaison globale des différents systèmes envisagés ; nous tentons

donc de décrire précisément ce que pourrait être un réacteur hybride à spectre rapide dédié à l'incinération d'actinides.

Chapitre 2

Quelques éléments de physique des systèmes sous-critiques

Nous serons amenés dans ce chapitre à comparer directement un système hybride à un réacteur critique ; il semble nécessaire de faire tout d’abord un rappel du fonctionnement d’un réacteur critique. De nombreux types de réacteurs ont été étudiés, utilisant des caloporteurs et des combustibles divers. Nous choisissons de décrire le cas des réacteurs à eau sous pression (REP) du parc EDF. La filière des réacteurs à neutrons rapides (RNR) sera mentionnée puisque qu’elle fait partie de la plupart des scénarios envisagés par EDF et le CEA. Dans une seconde partie, nous nous intéresserons en détail aux caractéristiques d’un système sous-critique, principalement au niveau de la zone multiplicatrice où se produisent les fissions, mais aussi au niveau du réflecteur où les produits de fission pourraient être placés afin d’être transmutés. Enfin, nous décrirons l’expérience MUSE 3 effectuée à Cadarache et tenterons de faire le lien avec les caractéristiques théoriques qui auront été exposées en étudiant précisément la réponse en temps du réacteur MASURCA à une source de neutrons pulsée.

2.1 Rappel de fonctionnement d’un réacteur critique [2, 3, 4]

2.1.1 Combustibles utilisés

Les réacteurs thermiques actuels utilisent l’ ^{235}U comme noyau fissile principal. Ce noyau est présent naturellement dans le minerai d’uranium composé d’environ 0.7% d’ ^{235}U et de 99.3% d’ ^{238}U . Cet uranium naturel est enrichi jusqu’à obtenir une concentration en ^{235}U d’environ 3% afin d’être utilisé en réacteur. Initialement, le seul noyau fissile présent est donc l’ ^{235}U , mais au cours de l’évolution, les noyaux de ^{239}Pu (produits par capture neutronique sur l’ ^{238}U) apportent une part de plus en plus grande à l’énergie délivrée. Cependant, la production du ^{239}Pu est insuffisante pour compenser la disparition de l’ ^{235}U , qui n’est pas régénéré. De plus, les produits de

fission qui apparaissent au cours du fonctionnement ont une section efficace moyenne de capture (n,γ) relativement importante, ils sont ainsi consommateurs de neutrons et tendent à faire chuter la réactivité. Pour compenser cette chute inévitable de réactivité au cours du fonctionnement du réacteur, on fait appel à des réserves de réactivités ; des poisons à neutrons (principalement du bore) sont introduits initialement dans le cœur du réacteur, et enlevés au cours du temps. La chute d'absorption neutronique engendrée vient alors compenser l'empoisonnement dû aux produits de fission et la disparition des noyaux fissiles. Un réacteur thermique de type REP fonctionne ainsi pendant plusieurs dizaines d'années, durant lesquelles certaines manipulations sont effectuées sur le combustible afin d'optimiser son utilisation ; régulièrement, des barreaux centraux sont retirés du cœur, alors que de nouveaux éléments sont placés en périphérie.

Le combustible retiré du cœur est placé en piscine où on le laisse refroidir quelques années sous surveillance. Ce refroidissement consiste à attendre que les noyaux radioactifs à vie très courte aient disparu, la chaleur dégagée est alors suffisamment faible pour permettre la manipulation et l'éventuel retraitement du combustible.

2.1.2 Retraitement, surgénération

Le combustible utilisé issu d'un premier cycle en réacteur REP peut être retraité, c'est la politique suivie actuellement par EDF. Le plutonium extrait est recyclé dans des assemblages MOX (UO_2 , PuO_2) dans une partie des réacteurs du parc EDF. Une autre façon de retraiter le combustible utilisé est d'utiliser le plutonium recyclé comme matière fissile principale du cycle uranium dans des réacteurs à neutrons rapides comme c'était le cas dans le surgénérateur Superphénix. Le cœur était composé principalement d' ^{238}U et d'un mélange isotopique de plutonium. Selon la configuration initiale du réacteur choisie, le réacteur pouvait être utilisé comme surgénérateur de plutonium, et assurer ainsi la production de combustible. Cette façon de générer le combustible permet d'utiliser au mieux le minerai dont on dispose, dans le sens où les noyaux fertiles (prépondérants dans les minerais) participent pleinement à la production d'énergie, via les noyaux fissiles qu'ils génèrent par capture neutronique. La composition isotopique du plutonium issu d'un REP est donnée dans le tableau 2.1 [6] ; par la suite ce mélange isotopique de plutonium sera noté simplement Pu.

^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu
59.6 %	23.0 %	12.3 %	5.1 %

TAB. 2.1 – Composition isotopique du plutonium issu d'un réacteur de type REP

D'après les réserves actuelles (cf tableau 1.2) en ^{235}U (seul noyau fissile présent dans la nature), une énergie nucléaire durable ne peut se passer de la régénération de son propre combustible. Ainsi, on peut extraire, d'une même quantité de minerai, environ 100 fois plus d'énergie

que dans la filière actuelle. De plus, cela engendrerait une baisse des coûts d'extraction (normalisés par l'énergie fournie) et permettrait d'envisager l'exploitation de nouveaux gisements, trop coûteux à l'heure actuelle. On estime que le temps d'exploitation pourrait ainsi être multiplié par un facteur 10000. De la même manière, les gisements de thorium, trois fois plus élevés que ceux de l'uranium, permettraient de produire de l'énergie pendant plusieurs milliers d'années. L' ^{238}U et le ^{232}Th constituent les seuls noyaux fertiles disponibles naturellement.

2.1.3 Réaction en chaîne

Dans un réacteur nucléaire, l'énergie délivrée provient des fissions des noyaux lourds provoquées par les neutrons présents dans le cœur du système. Lors d'une fission, ν neutrons sont émis en moyenne (de 2.5 à 3 environ selon les noyaux et l'énergie des neutrons incidents) et peuvent à leur tour provoquer une autre fission. Le terme de criticité signifie qu'une fission engendre en moyenne une autre fission. Autrement dit, sur les ν neutrons émis par une fission, un en moyenne, provoquera la fission d'un autre noyau. Dans ce cas, la réaction en chaîne des fissions s'entretient d'elle-même et une fois le réacteur en fonctionnement, aucune source de neutrons n'est nécessaire pour produire de l'énergie. Pour décrire cette réaction en chaîne, on utilise un facteur de multiplication effectif, noté k_{eff} , qui représente le nombre de neutrons issus d'une fission provoquant une autre fission. D'après ce qui a été dit précédemment, le cas critique correspond à $k_{eff} = 1$. Si ce facteur dépasse cette valeur critique, le nombre de fissions tend à diverger rapidement selon une loi exponentielle dont le temps caractéristique est de l'ordre de quelques centaines de microsecondes pour un réacteur thermique de type REP. Inversement, si ce facteur k_{eff} devient inférieur à 1, la réaction en chaîne s'arrête, et le réacteur ne produit plus d'énergie. Il apparaît donc que le facteur k_{eff} doit être égal à 1 pendant toute la durée du fonctionnement du réacteur. Il existe en fait une fourchette sur la valeur de k_{eff} à l'intérieur de laquelle on peut se placer sans risquer une divergence immédiate du système, et tout en assurant l'entretien de la réaction en chaîne. Cette fourchette indispensable pour pouvoir piloter un réacteur critique est due à l'émission retardée de neutrons lors du processus de fission.

2.1.4 Pilotage du réacteur, neutrons retardés

Les neutrons retardés sont des neutrons produits quelques secondes après une fission ; ils proviennent de produits de fission émetteurs β dont les fils se désintègrent en émettant un neutron.

Le neutron émis par le noyau fils doit être très peu lié, ce qui est le cas pour des noyaux se situant juste au dessus (en nombre de neutrons) d'une couche magique ($N=50$ et $N=82$ par exemple). Les produits de fission émetteurs β responsables de ces neutrons retardés doivent donc posséder deux neutrons de plus que le nombre correspondant à une couche magique. C'est le

cas par exemple du ^{87}Br et de l' ^{137}I , qui sont responsables de la plupart des neutrons retardés émis dans un réacteur. La distribution en masse des produits de fission étant relativement dépendante du noyau qui fissionne, on comprend que la proportion des neutrons retardés peut varier de manière significative d'un noyau fissile à l'autre. Le tableau 2.2 montre la proportion β_r de neutrons retardés pour quelques uns des noyaux les plus intéressants pour les réacteurs nucléaires. Il s'agit de noyaux fertiles (^{232}Th et ^{238}U), qui ont une faible section efficace de fission, mais qui sont présents en grande quantité, des principaux noyaux fissiles des différentes filières envisageables (^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu et ^{241}Pu), et des actinides mineurs produits par les réacteurs actuels.

	Noyau	β_r
fertiles	^{232}Th	2.0
	^{238}U	1.48
fissiles	^{233}U	0.26
	^{235}U	0.64
	^{239}Pu	.21
	^{241}Pu	.54
actinides mineurs	^{241}Am	.14
	^{242m}Am	.25
	^{243}Am	.23
	^{243}Cm	.07
	^{245}Cm	.17

TAB. 2.2 – *Proportion des neutrons retardés pour les principaux noyaux définissant le comportement d'un réacteur [10, 33]*

On observe immédiatement que les deux noyaux fertiles ^{232}Th et ^{238}U ont une proportion de neutrons retardés bien supérieure aux noyaux fissiles envisagés ; malgré leur faible section efficace de fission (comparée à celle des noyaux fissiles), ces noyaux peuvent donc intervenir de manière significative dans la quantité globale de neutrons retardés d'un système, et permettre ainsi le pilotage du réacteur. Inversement, un réacteur composé uniquement de ^{239}Pu par exemple, aurait une quantité globale de neutrons retardés relativement faible, ce qui rendrait le système extrêmement “nerveux”, et ainsi délicat à piloter en mode critique.

2.1.5 Coefficients de vide et de température

Afin d'optimiser la sûreté d'un réacteur critique, le système doit avoir un comportement auto-stabilisant en fonction de différents paramètres qui sont amenés à évoluer lors d'un incident de fonctionnement. Les deux paramètres les plus importants sont le vide et la température. Une

perte de caloporteur par exemple ne doit pas entraîner une augmentation de réactivité, tout comme une perte de refroidissement. Le comportement du réacteur en fonction du vide et de la température dépend de plusieurs effets ; nous faisons ici une liste des principaux :

- Effet Doppler

L'agitation thermique des noyaux de combustible a pour effet de modifier l'énergie apparente du neutron incident dans le référentiel du noyau. Tout se passe comme si la section efficace du noyau considéré était convoluée par une gaussienne dont la largeur est proportionnelle à la température du milieu et donc comme si les résonances des noyaux étaient élargies. Un neutron en cours de ralentissement a donc plus de chances d'avoir une énergie correspondant à ces résonances, et donc d'être capturé. Dans un réacteur de type REP, c'est la résonance de capture (n, γ) de l' ^{238}U à 6.5 eV qui joue le rôle le plus important pour l'effet Doppler. Pour cette raison, dans ce type de réacteur, une augmentation de température entraîne une chute de réactivité, l'effet Doppler y est donc stabilisant.

- Effet de vide

Une perte de caloporteur dans le cœur peut être provoquée par différents phénomènes, comme une brusque montée en température ou une rupture de canalisation. Ce type d'incident peut jouer sur la réactivité de différentes manières. Dans le cas où le caloporteur possède une section efficace d'absorption importante, sa disparition peut induire une augmentation de réactivité. Mais un autre effet est généralement plus important ; dans la plupart des réacteurs thermiques, le caloporteur est responsable du ralentissement des neutrons, une perte de caloporteur signifie donc que les neutrons ne sont plus ralentis dans le cœur. Compte tenu des rapports entre sections efficaces de capture et de fission des noyaux de combustible, un tel durcissement du spectre neutronique induit une chute de réactivité. L'exemple du réacteur de Tchernobyl montre l'importance de ces deux effets inverses ; en effet ce type de réacteur est refroidi par de l'eau, les neutrons étant en partie ralentis par le caloporteur et par du graphite. Une perte de caloporteur signifie une baisse de l'absorption dans le cœur sans modification importante du spectre neutronique, puisque le graphite joue toujours son rôle de ralentisseur. Ce type de réacteur possède donc un coefficient de vide positif, puisque l'effet sur le spectre ne vient pas compenser la diminution d'absorption due à la perte de caloporteur.

- Dilatation

La dilatation due à une augmentation de température peut modifier suffisamment la géométrie du système pour avoir un effet significatif sur la réactivité. En général, une dilatation globale du cœur tend à espacer les barreaux de combustible les uns des autres et à diminuer ainsi la réactivité.

Tous ces effets sont très dépendants des matériaux utilisés, qu'il s'agisse du combustible, du caloporteur, ou même des éléments de structure. Le mode critique implique donc de fortes contraintes de sûreté sur la composition du réacteur. Les neutrons retardés doivent être en nombre suffisant pour pouvoir piloter la machine. La température et le vide doivent avoir un effet négatif sur la réactivité. Ces contraintes limitent l'utilisation de certains types de combustible ou de caloporteur. Si l'on envisage par exemple un incinérateur de plutonium, où il n'y aurait aucune matrice fertile dans le cœur (^{232}Th ou ^{238}U), la faible proportion de neutrons retardés induit par ce type de noyaux rendrait le pilotage d'un réacteur en mode critique extrêmement délicat.

Les contraintes sur le type de combustible peuvent être en partie levée par l'utilisation d'un système sous-critique piloté par accélérateur. Pour le comprendre, nous décrivons dans la partie suivante quelques éléments fondamentaux de la physique des systèmes sous-critiques.

2.2 Propriétés neutroniques d'un réacteur hybride

2.2.1 Retour sur la définition de k_{eff}

Comme il a été dit précédemment, k_{eff} peut être vu comme la probabilité pour qu'une fission engendre une nouvelle fission. Une autre façon de définir ce facteur est de faire le rapport entre le nombre de neutrons créés par fission et le nombre total de neutrons absorbés. Dans le cas d'un réacteur critique en fonctionnement, le nombre de neutrons créés par fission peut s'écrire (en négligeant les réactions (n,xn)) :

$$N_{crées} = \sum_i \int_E \int_{\vec{r}} \nu_i(E) n_i(\vec{r}) \sigma_i^{fis}(E) \phi(E, \vec{r}) dE d^3\vec{r} \quad (2.1)$$

- $n_i(\vec{r})$ est le nombre de noyaux i par unité de volume à la position \vec{r} du réacteur
- $\nu_i(E)$ est le nombre de neutrons émis par la fission du noyau i provoquée par un neutron d'énergie E
- $\sigma_i^{fis}(E)$ est la section efficace différentielle de fission du noyau i à l'énergie E
- $\phi(E, \vec{r})$ est le flux neutronique différentiel à l'énergie E et à la position \vec{r}

Il est à noter que la somme s'effectue sur tous les noyaux du combustible (fissiles et fertiles), les éléments de structure n'intervenant pas dans ce facteur. De la même manière, le nombre total de neutrons absorbés par réaction nucléaire peut être écrit comme suit :

$$N_{abs} = \sum_j \int_E \int_{\vec{r}} n_j(\vec{r}) \sigma_j^{abs}(E) \phi(E, \vec{r}) dE d^3\vec{r} \quad (2.2)$$

- σ_j^{abs} est la section efficace différentielle d'absorption du noyau j à l'énergie E ; pour les noyaux de combustible on a $\sigma_j^{abs} \approx \sigma_j^{cap} + \sigma_j^{fis}$

La somme s'effectue maintenant sur tous les matériaux présents dans le cœur, y compris le caloporteur et les éléments de structure. On peut faire la distinction de ces deux termes en écrivant :

$$N_{abs} = \sum_i \int_E \int_{\vec{r}} n_i(\vec{r}) \sigma_i^{abs}(E) \phi(E, \vec{r}) dE d^3\vec{r} + \Sigma_0^{abs} \int_E \int_{\vec{r}} \phi(E, \vec{r}) dE d^3\vec{r} \quad (2.3)$$

- La première somme représente les absorptions dans le combustible ; en règle générale, c'est cette partie de N_{abs} qui aura tendance à évoluer durant le fonctionnement du réacteur.
- Σ_0^{abs} représente la section efficace macroscopique d'absorption dans le caloporteur et les éléments de structure. Dans un réacteur rapide, les sections efficaces de ces noyaux sont suffisamment faibles pour que cette section efficace macroscopique Σ_0^{abs} n'évolue quasiment pas durant le fonctionnement du réacteur.

Il faut ajouter au terme d'absorption un terme représentant les neutrons qui s'échappent du réacteur ; Ce terme de fuite est délicat à définir du fait de la présence d'un réflecteur qui permet à des neutrons qui s'échappent du cœur d'y revenir après quelques diffusions, cependant, on écrit ce terme dans le formalisme des équations de diffusion :

$$N_{fuite} = \int_S \vec{J} d\vec{S} \quad (2.4)$$

où \vec{J} représente un courant de neutrons à travers les surfaces extérieures du réacteur S.

D'après ce qu'il vient d'être expliqué, le facteur de multiplication k_{eff} peut être écrit sous la forme :

$$k_{eff} = \frac{\sum_i \int_E \int_{\vec{r}} \nu_i(E) n_i(\vec{r}) \sigma_i^{fis}(E) \phi(E, \vec{r}) dE d^3\vec{r}}{\sum_i \int_E \int_{\vec{r}} n_i(\vec{r}) \sigma_i^{abs}(E) \phi(E, \vec{r}) dE d^3\vec{r} + \Sigma_0^{abs} \int_E \int_{\vec{r}} \phi(E, \vec{r}) dE d^3\vec{r} + \int_S \vec{J} d\vec{S}} \quad (2.5)$$

Implicitement, cette définition suppose que la source de neutrons responsables des fissions est une source stabilisée en position dans le réacteur, et bien sûr en énergie, puisque ces neutrons proviennent eux-mêmes de fissions. Ce facteur de multiplication ne permet donc pas de décrire l'effet d'une source externe de neutrons, qui n'intervient pas dans le cas d'un réacteur critique en fonctionnement, mais qui joue un rôle important dans le cas d'un système sous-critique, où la réaction en chaîne des fissions est limitée. Nous sommes donc obligés d'introduire d'autres facteurs de multiplication qui prendront en compte l'effet de la source externe afin de décrire correctement le comportement d'un cœur sous-critique.

2.2.2 Facteur de multiplication k_i

Nous nous plaçons maintenant dans le cas d'un cœur sous-critique, soumis à une source de neutrons quelconque. Nous commençons par définir un facteur de multiplication pour chaque génération noté k_i , qui représente simplement le rapport entre le nombre de neutrons de la génération i et le nombre de neutrons de la génération $(i - 1)$.

$$k_i = \frac{n(i)}{n(i - 1)} \quad (2.6)$$

où $n(i)$ représente le nombre de neutrons de la $i^{\text{ème}}$ génération. D'après la définition du facteur de multiplication effectif k_{eff} on peut d'ores et déjà écrire

$$k_i \rightarrow k_{eff} \text{ lorsque } i \rightarrow \infty$$

On peut à partir des facteurs de multiplication k_i décrire la façon dont se multiplie un neutron source dans le réacteur et ainsi calculer le nombre total de neutrons produits par un neutron source :

<i>source</i>	N_s
$1^{\text{ère}}$ génération	$k_1 N_s$
$2^{\text{ème}}$ génération	$k_1 k_2 N_s$
$3^{\text{ème}}$ génération	$k_1 k_2 k_3 N_s$
...	...
$n^{\text{ème}}$ génération	$k_1 k_2 k_3 \dots k_n N_s$
TOTAL	$\sum_{i=0}^{+\infty} \left(\prod_{j=0}^i k_j \right) . N_s \quad (\text{en notant } k_0 = 1)$

Si les premières générations de neutrons se comportent différemment des neutrons émis par une source stabilisée de fission, comme ce sera le cas la plupart du temps, on comprend en observant cette formule que k_{eff} ne permet pas de décrire la multiplication globale des neutrons source. Cependant, lorsque le faisceau de protons est arrêté (lors d'un incident par exemple ou d'une période de manutention), la source externe de neutrons est maintenant inexistante, et c'est très vite k_{eff} qui gouverne la multiplication des neutrons dans le système. Le facteur de multiplication effectif reste donc un facteur important pour la sûreté, même s'il ne permet pas de décrire correctement la multiplication de tous les neutrons du réacteur lors de son fonctionnement.

2.2.3 Facteur de multiplication global k_s

Pour simplifier les notations précédentes, on introduit un facteur de multiplication global de la source de neutrons, noté k_s , qui peut être vu comme un facteur de multiplication moyen de

chaque génération, on obtient alors :

$$N_{tot} = \sum_{i=0}^{+\infty} \left(\prod_{j=0}^i k_j \right) . N_s = \sum_{i=0}^{+\infty} \left(\prod_{j=0}^i k_s \right) . N_s = \sum_{i=0}^{+\infty} k_s^i . N_s = \frac{1}{1 - k_s} N_s \quad (2.7)$$

et on retrouve la définition pratique d'un facteur de multiplication :

$$k_s = \frac{N_{tot} - N_s}{N_{tot}} = \frac{N_{cr\acute{e}es}}{N_{tot}} \quad (2.8)$$

Cette définition est mathématiquement la même que celle de k_{eff} mais prend maintenant en compte l'effet de la source externe différente de la source de fission stabilisée.

2.2.4 Gain du système hybride

D'après les définitions précédentes de k_i et de k_s , il est possible de calculer le nombre de fissions induites par un neutron source et de remonter ainsi au gain énergétique du système. Ce gain est défini par le rapport entre l'énergie récoltée après multiplication des neutrons dans le cœur et l'énergie du proton incident :

$$G = \frac{N_s N_{fis} \varepsilon_{fis}}{E_p} \quad (2.9)$$

avec

- N_s le nombre total de neutrons créés par un proton par réactions de spallation dans la cible
- N_{fis} le nombre de fissions induites par un neutron source
- ε_{fis} l'énergie délivrée par une fission
- E_p l'énergie du proton incident

Calculons maintenant le nombre de fissions N_{fis} induites par un neutrons source. On revient à la description génération par génération :

Numéro génération	Nb fissions issues de cette génération	Nb neutrons émis par ces fissions	Nb neutrons calculés en utilisant k_i
<i>source</i>	N_1^{fis}	νN_1^{fis}	k_1
1	N_2^{fis}	νN_2^{fis}	$k_1 k_2$
2	N_3^{fis}	νN_3^{fis}	$k_1 k_2 k_3$
...
n	N_{n+1}^{fis}	νN_{n+1}^{fis}	$k_1 k_2 \dots k_{n+1}$

Les deux dernières colonnes correspondent à deux manières différentes de calculer le nombre de neutrons de la génération i , par identification, on obtient donc :

$$N_1^{fis} = \frac{k_1}{\nu}$$

$$N_2^{fis} = \frac{k_1 k_2}{\nu}$$

et

$$N_n^{fis} = \frac{k_1 k_2 \dots k_n}{\nu}$$

Alors

$$N_{fis} = \sum_{i=1}^{\infty} \left(\prod_{j=0}^i k_j \right) \cdot \frac{1}{\nu} \quad (\text{avec } k_0 = 1) \quad (2.10)$$

Il est à noter que l'indice sur la somme commence maintenant à 1. On a alors, en commençant la sommation à l'indice 0 et en utilisant la relation 2.7 :

$$N_{fis} = \sum_{i=0}^{\infty} \left(\prod_{j=0}^i k_j \right) \cdot \frac{1}{\nu} - \frac{1}{\nu} = \frac{1}{\nu} \frac{1}{1 - k_s} - \frac{1}{\nu} = \frac{1}{\nu} \frac{k_s}{1 - k_s} \quad (2.11)$$

Le gain s'obtient finalement en utilisant la relation 2.9 :

$$G = \frac{N_s}{\nu} \cdot \frac{k_s}{1 - k_s} \cdot \frac{\varepsilon_{fis}}{E_p} \quad (2.12)$$

Application numérique

On donne dans le tableau 2.3 un exemple d'application numérique pour toutes les grandeurs évoquées dans le calcul précédent afin d'avoir à l'esprit un ordre de grandeur de ces quantités dans un cas réaliste de système hybride.

Facteur de multiplication de la source	k_s	0.98
Nombre moyen de neutrons émis par fission	ν	3.
Nb neutrons par neutron source	$\frac{1}{1 - k_s}$	50
Nb fissions par neutron source	$\frac{1}{\nu} \frac{k_s}{1 - k_s}$	16
Energie des protons incidents	E_P	1 GeV
Nombre de neutrons source par proton	N_s	30[20]
Energie délivrée par une fission	ε_{fis}	200 MeV
Gain total	G	120

TAB. 2.3 – Calcul du gain neutronique d'un système sous critique

Le gain calculé est un gain neutronique qui ne tient pas compte des rendements de l'accélérateur et des échangeurs de chaleur du réacteur ; si on considère que chacun de ces coefficients est

d'environ 40%, on obtient un gain global de l'ordre de 20, cela signifie que la puissance nécessaire pour faire fonctionner l'accélérateur représente environ 5% de la puissance totale délivrée par le système.

Nous avons décrit dans cette partie les paramètres utilisés pour décrire la multiplication des neutrons dans un système hybride, et montré de quelle façon un tel système peut produire de l'énergie tout en étant sous-critique. Les avantages offerts par ces systèmes seront abordés après avoir discuté des différences entre les trois facteurs de multiplication précédemment définis .

2.2.5 Comparaisons des trois facteurs de multiplication k_{eff} , k_i et k_s

Il paraît indispensable à ce stade de comparer en détail les trois facteurs de multiplication définis précédemment afin de bien comprendre dans quelle mesure ils interviennent dans le comportement d'un système sous-critique.

L'exemple traité dans ce paragraphe n'est absolument pas réaliste mais permet d'illustrer les différences fondamentales existant entre les facteurs de multiplication k_{eff} , k_i et k_s ; il permet également de montrer qu'il est possible d'obtenir un système possédant un gain très élevé (soit k_s très proche de 1) tout en assurant une sûreté optimale (faible k_{eff}). Le système simulé est représenté sur la figure 2.1 ; il est composé d'une sphère centrale de 4.64 cm de rayon, et d'une coquille distante de 10 m de la sphère, d'une épaisseur de 1.54 cm. Les deux parties du système sont composées de ^{239}Pu pur d'une densité de 20 g/cm³.

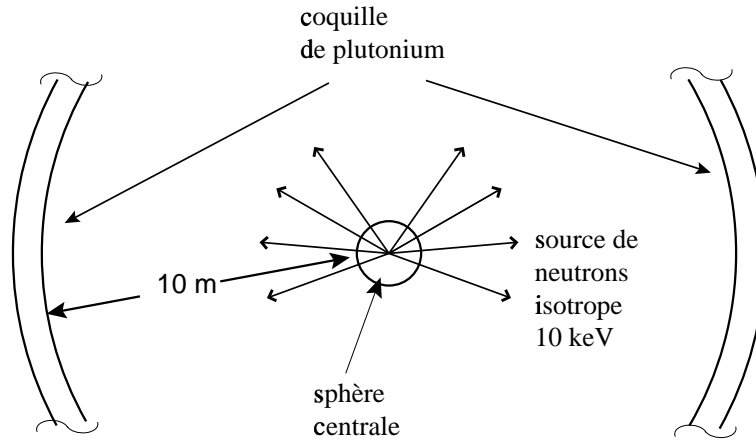


FIG. 2.1 – Géométrie du système “sphère + coquille” de plutonium

La source externe simulée est centrée, isotrope et monoénergétique à 1 keV. Les caractéristiques de la multiplication des neutrons sont résumées dans le tableau 2.4.

On observe un comportement très différents des facteurs de multiplication k_s et k_{eff} lors du couplage des deux sous-systèmes ; k_{eff} n'est quasiment pas affecté par le couplage de la sphère centrale et de la coquille, alors que la valeur de k_s a sensiblement augmenté. Le système complet a

k_{s_1} sphère seule	0.97
k_{eff_1} sphère seule	0.95
k_{s_2} coquille seule	0.975
k_{eff_2} coquille seule	0.95
k_s système complet	0.997
k_{eff} système complet	0.95

TAB. 2.4 – *Facteurs de multiplication du système “sphère+coquille” et de chacun des sous-systèmes.*

donc un gain neutronique très élevé, pour une sûreté accrue (k_{eff} faible). Ce comportement peut s’expliquer de différentes manières. La première remarque concerne la très faible probabilité pour les neutrons créés dans la coquille de revenir dans la sphère centrale ; inversement, les neutrons sortant de la sphère centrale sont obligés de traverser la coquille extérieure, ces neutrons se comportent donc comme des neutrons source pour la coquille. On peut calculer le nombre de neutrons sortant de la sphère centrale (pour un neutron source) : d’après 2.11, le nombre de neutrons ayant produit une fission dans la sphère vaut

$$N_{fis} = \frac{1}{1 - k_{s_1}} \frac{k_{s_1}}{\nu} \quad (2.13)$$

Si l’on tient compte des captures (n, γ) dans le plutonium, le nombre de neutrons servant à produire une fission vaut

$$N = \frac{\sigma_{abs}}{\sigma_{fis}} \quad (2.14)$$

Ainsi, le nombre de neutrons N_{s_1} (toujours par neutron source) sortant de la sphère centrale s’exprime sous la forme :

$$N_{s_1} = \frac{1}{1 - k_{s_1}} \left(1 - \frac{k_{s_1}}{\nu} \frac{\sigma_{abs}}{\sigma_{fis}} \right) \quad (2.15)$$

Ces neutrons se multiplient alors selon le facteur de multiplication k_{s_2} ; on peut donc calculer le facteur de multiplication k_s du système couplé comme suit :

$$\frac{1}{1 - k_s} = \frac{1}{1 - k_{s_1}} \left(1 - \frac{k_{s_1}}{\nu} \frac{\sigma_{abs}}{\sigma_{fis}} \right) \frac{1}{1 - k_{s_2}} \quad (2.16)$$

L’application numérique donne $k_s \approx 0.996$, ce qui confirme que les neutrons issus de la coquille ne reviennent quasiment pas dans la sphère centrale.

La figure 2.2 montre l’évolution des facteurs de multiplication k_i du système couplé et permet d’observer le temps relativement long que met le système à se stabiliser : près de 50 générations sont nécessaires pour voir k_i converger vers k_{eff} .

Une fois la source stabilisée, comme les premières fissions ont eu lieu dans la sphère et que les neutrons produits dans la coquille ont très peu de chance de retourner dans la sphère

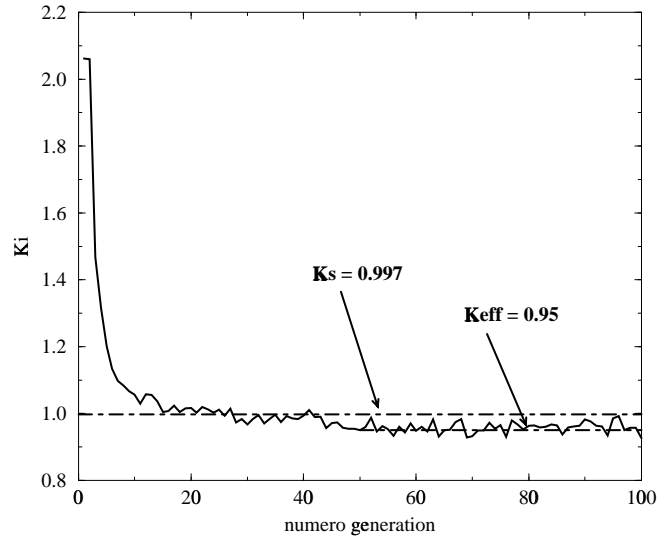


FIG. 2.2 – *Evolution des facteurs de multiplication k_i en fonction du numéro de génération pour le système "sphère+coquille" de plutonium.*

centrale, la quasi-totalité des fissions se situent dans la coquille, ce qui explique que le facteur de multiplication k_{eff} du système couplé est très peu différent du facteur de multiplication de la coquille seule k_{eff_2} . La figure 2.3 représente la distribution des fissions lorsque la source est stabilisée et confirme le raisonnement précédent.

Cet exemple non réaliste met en évidence la possibilité d'obtenir un système à gain très élevé conservant des caractéristiques de sûreté optimales. On pourrait tenter d'adapter ce type de géométrie à un réacteur nucléaire afin d'augmenter son facteur de multiplication k_s tout en gardant un facteur k_{eff} relativement faible, ce qui pourrait laisser espérer une intensité requise pour l'accélérateur sensiblement diminuée [34].

2.3 Les observables expérimentales d'un système sous-critique

On ne peut avoir accès expérimentalement à toutes les caractéristiques théoriques d'un système sous-critique. Le seul paramètre neutronique global est le gain du système, qui est directement accessible, en mesurant la puissance du faisceau et la puissance thermique sortant du réacteur.

Une étude détaillée du comportement d'un cœur sous-critique soumis à une source externe de neutrons est possible en plaçant différents types de détecteurs à différents endroits du cœur. On peut ainsi espérer mesurer différentes caractéristiques neutroniques du système, les trois para-

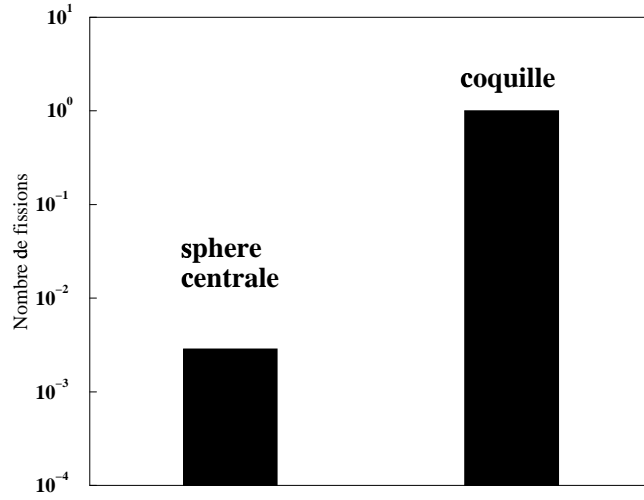


FIG. 2.3 – *Distribution des fissions une fois la source stabilisée.*

mètres accessibles du neutron détecté étant son énergie, sa position et l'instant de sa détection. Il est impossible cependant de connaître l'histoire d'un neutron détecté et de remonter ainsi au coefficient de multiplication de chaque génération k_i . Il est alors nécessaire de faire un lien entre ces facteurs de multiplication k_i et la réponse temporelle d'un cœur sous-critique soumis à une impulsion de neutrons, qui elle est mesurable ; c'est ce qui a été réalisé sur le réacteur expérimental MASURCA lors de l'expérience MUSE 3.

2.3.1 Comportement temporel d'un réacteur sous-critique

Nous commençons par considérer un réacteur sous critique de type MASURCA soumis à une source de neutrons dont la distribution temporelle est une fonction de Dirac $\delta(t)$. Si on considère que le temps entre chaque génération est une constante que l'on notera θ , et que toutes les générations se multiplient avec le même coefficient de multiplication k , le nombre de neutrons passe de n à kn pendant un temps θ , on obtient donc (en négligeant l'effet des neutrons retardés)

$$\frac{dn}{dt} = \frac{kn - n}{\theta} \quad (2.17)$$

soit

$$\frac{dn}{n} = \frac{k - 1}{\theta} dt \quad (2.18)$$

Cette équation différentielle s'intègre comme suit

$$n = n_0 e^{\frac{k-1}{\theta}t} \quad (2.19)$$

La réponse temporelle à une source de neutrons externe est une exponentielle de temps caractéristique τ défini par :

$$\tau = \frac{\theta}{1 - k} \quad (2.20)$$

Ce temps caractéristique dépend à la fois du facteur de multiplication et de la durée de vie d'une génération. Il apparaît donc, même dans des hypothèses simplificatrices, que la mesure de l'évolution du spectre en temps d'un réacteur sous critique soumis à un pulse de neutrons ne peut donner directement la valeur de la réactivité. De plus, de nombreux facteurs rendent ce calcul très délicat à utiliser dans la réalité; nous avons montré que la multiplication des premières générations est très différente d'une multiplication stabilisée gouvernée par un facteur de multiplication constant k_{eff} , notamment au niveau de la répartition spatiale des neutrons. La forme du spectre en temps risque donc d'être relativement dépendante de la position du détecteur dans le cœur du système. Par ailleurs, on peut penser que les temps caractéristiques des premières générations ainsi que la forme de la distribution temporelle de ces générations sont relativement différents de la durée des générations une fois la source de fission stabilisée. Les inhomogénéités du cœur, dues par exemple à la présence du générateur de neutrons, peuvent elles aussi déformer les distributions temporelles de chacune des générations. Enfin, la largeur de l'impulsion de neutrons produite par le générateur influence la forme du spectre en temps mesuré.

Nous décrivons les effets les plus importants en présentant maintenant les études par simulation qui ont été effectuées en préparation aux expériences MUSE. Quelques résultats de l'expérience MUSE 3 seront ensuite exposés.

2.4 Préparations des expériences MUSE

2.4.1 Description du réacteur expérimental Masurca [5]

MASURCA est un réacteur d'étude fonctionnant à très faible puissance ($P_{max} \approx 5kW$) construit sur le site de Cadarache. Le flux neutronique dans le cœur et le réflecteur est lui aussi très faible ($\approx 10^8 \text{ n/cm}^2/\text{s}$). Ces faibles valeurs de puissance et de flux ont de nombreux avantages qui font de MASURCA un outil privilégié pour l'étude neutronique de systèmes innovants (nouveaux combustibles, cœurs sous-critiques, etc...). En effet, la faible puissance permet l'utilisation d'un système de refroidissement simplifié (pas de liquide nécessaire pour évacuer la chaleur) et d'une géométrie modulaire du cœur et du réflecteur associée à un système de chargement des assemblages automatique. Différentes configurations du cœur peuvent ainsi être étudiées en un temps raisonnable.

2.4.2 Simulations de MASURCA

Avant d'exposer les études qui ont permis de préparer les expériences MUSE, il convient dans un premier temps de définir dans quelles conditions les simulations du réacteur expérimental MASURCA ont été effectuées. Il n'a pas été possible de disposer de la géométrie très détaillée des éléments de ce réacteur. Les calculs Monte Carlo ont donc été effectués avec une géométrie cylindrique homogénéisée, utilisée pour des calculs déterministes par les équipes du CEA. Il devrait être possible d'obtenir une description plus précise de la géométrie du réacteur, notamment du cœur de combustible et des barres de contrôle, d'ici le début de l'expérience MUSE 4. La figure 2.4 montre une configuration étudiée lors de l'expérience MUSE 3 telle qu'elle a été simulée. Cette configuration comprend une zone modératrice en plomb entourant le générateur permettant de simuler une cible de spallation. Les canaux de mesures, représentés sur les figures, permettent d'étudier le spectre en temps ou en énergie à différents endroits du cœur de MASURCA. Les spectres en temps et en énergie seront simulés dans ces canaux de mesures, à trois cotes différentes selon l'axe \vec{z} du réacteur.

Le cœur est constitué d'environ 50% de sodium solide et 50% de combustible, lui même constitué de 75 % d' ^{238}U et de 25% de plutonium. Le réflecteur est principalement constitué de sodium et d'acier.

La description relativement précise du générateur de neutrons SODERN (GENIE 26) utilisé n'a pu être obtenue pendant le travail de préparation des expériences MUSE. Les calculs effectués ne prennent donc en compte que la forme supposée de l'impulsion fournie par le constructeur.

Facteurs de multiplication

Nous revenons dans ce paragraphe à une description de la multiplication génération par génération. Différents degrés de sous-criticité ont été étudiés lors de l'expérience MUSE 3 ; nous choisissons dans ce paragraphe une configuration donnée pour illustrer les différences existant entre les facteurs de multiplication k_s et k_{eff} définis précédemment.

Il existe deux sources principales de neutrons dans MASURCA, d'une part la source centrée de neutrons de 14 MeV produits par le générateur SODERN, d'autre part la source de fission spontanée des noyaux de combustibles (principalement le ^{240}Pu). Cette source est répartie uniformément dans le cœur du réacteur.

Nous sommes donc en présence de deux sources très différentes, tant par leur distribution spatiale que par leur spectre énergétique. La distribution énergétique d'une source de fissions spontanées correspond à une distribution de Maxwell :

$$p(E) = c\sqrt{E} \cdot e^{-\frac{E}{a}} \text{ avec } a = 1.2895 \text{ MeV} \quad (2.21)$$

On s'intéresse dans un premier temps aux conséquences de la distribution spatiale initiale

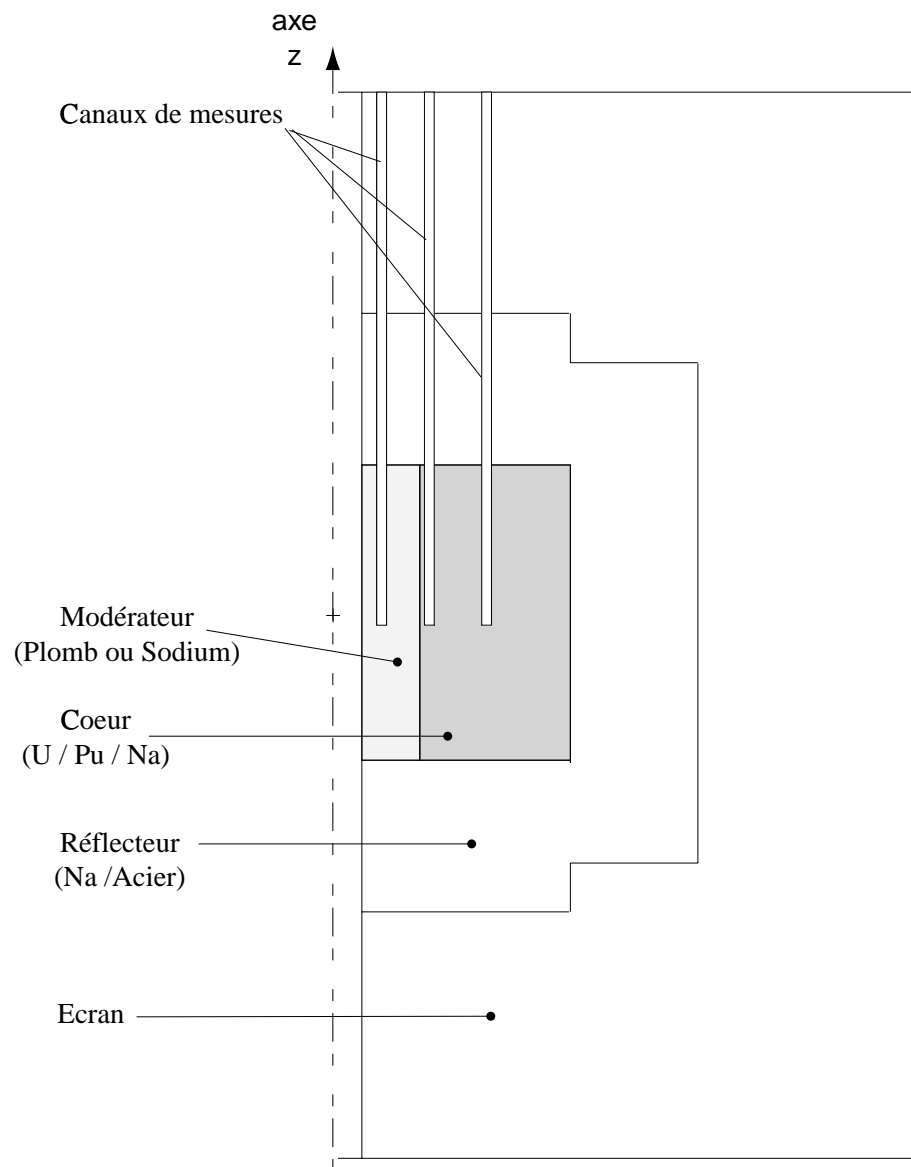


FIG. 2.4 – Géométrie de MASURCA en représentation cylindrique utilisée pour les simulations.

des neutrons source sur leur multiplication. Afin de limiter les effets de spectre énergétique des neutrons source, on compare la multiplication de la source de fissions spontanées à une source centrée de même spectre énergétique. La figure 2.5 montre l'évolution de la distribution spatiale des fissions induites par ces deux types de source.

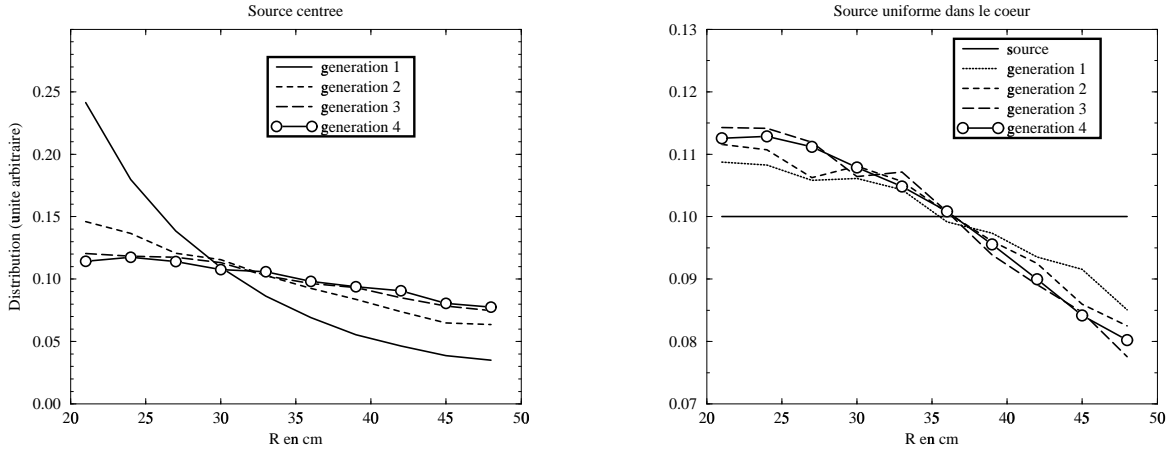


FIG. 2.5 – Evolution des distributions spatiales de deux sources de fissions spontanées, l'une centrée, l'autre répartie uniformément dans le cœur

On remarque tout d'abord que ces deux sources, d'origines spatiales différentes, convergent vers la même source de fission en quelques générations seulement, soit quelques microsecondes. La forme des distributions des premières générations diffère d'une source à l'autre et peut avoir des conséquences non négligeables sur l'efficacité de ces premiers neutrons. Par exemple, la source de fission spontanée émet plus de neutrons près des surfaces de fuite du réacteur comparée à une source de fission stabilisée. On peut donc penser que les premiers neutrons issus d'une source de fission spontanée uniforme dans le cœur du réacteur seront moins efficaces que ceux issus d'une source stabilisée en position, on s'attend donc à observer un facteur de multiplication global k_s pour cette source inférieur à k_{eff} . En ce qui concerne la source centrée de même spectre énergétique, les surfaces de fuite qui interviennent sont les surfaces supérieure et inférieure de la zone centrale (générateur et plomb), les prédictions sur le facteur de multiplication global sont alors plus délicates.

La figure 2.6 montre l'évolution des facteurs de multiplication k_i pour les deux sources étudiées et permet de répondre à l'interrogation concernant la source centrée; il apparaît que les fuites par les surfaces supérieure et inférieure de la zone centrale induisent une baisse d'efficacité des neutrons sources ($k_1 < k_{eff}$), et ainsi une valeur de k_s inférieure à k_{eff} . On remarque également que l'uniformité de la source de fissions spontanées a un effet très faible sur la valeur des premiers facteurs de multiplication k_i . On retrouve dans le tableau 2.5 les valeurs des différents

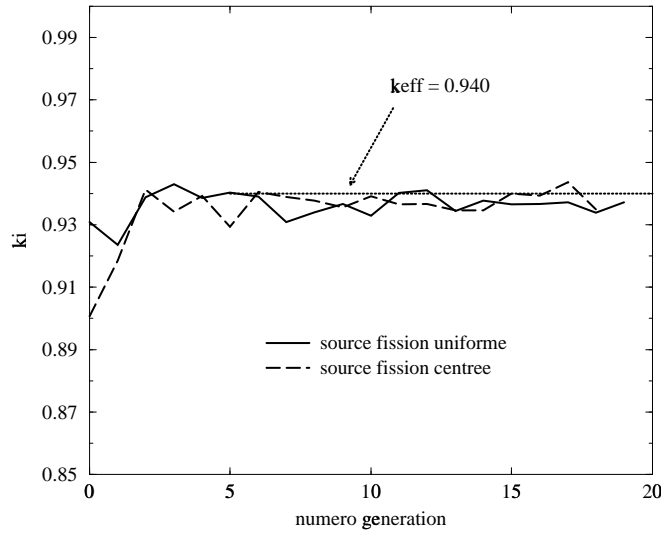


FIG. 2.6 – *Comparaison de l'évolution des facteurs de multiplication k_i du réacteur MASURCA, pour une source de fission centrée, et une source de fission répartie uniformément sur la zone fissile, en fonction du numéro de génération*

facteurs de multiplication concernant les deux sources étudiées. Même si les valeurs diffèrent peu entre les coefficients de multiplication de la source de fissions spontanées et la source centrée de même spectre énergétique, le comportement des premiers neutrons est très différent notamment au niveau de la répartition spatiale des premières fissions générées.

On s'intéresse maintenant à l'effet du spectre énergétique des neutrons issus du générateur placé au centre du réacteur ; on compare donc de la même manière que précédemment une source centrée de fission et une source centrée de neutrons monoénergétiques de 14 MeV. L'évolution des distributions spatiales des fissions des premières générations est peu influencée par cette différence d'énergie des neutrons sources, par contre, les réactions $(n, 2n)$ se produisant sur les noyaux de plomb par des neutrons d'énergie élevée (le seuil $(n, 2n)$ du plomb est de l'ordre de 7 MeV) permettent de "multiplier" les neutrons source avant qu'ils ne provoquent les premières fissions. Cet effet induit un facteur de multiplication k_1 très important ($k_1 = 1.69$) visible sur la figure 2.7, dont l'effet sur le facteur de multiplication global k_s n'est pas négligeable. Les résultats sur les différents facteurs de multiplication de cet exemple sont résumés dans le tableau 2.5.

Spectres en temps en fonction de la réactivité

D'après le calcul qui ont été faits précédemment, on s'attend à ce que la réponse temporelle d'un réacteur sous-critique à une source δ de neutrons soit de forme exponentielle. La figure

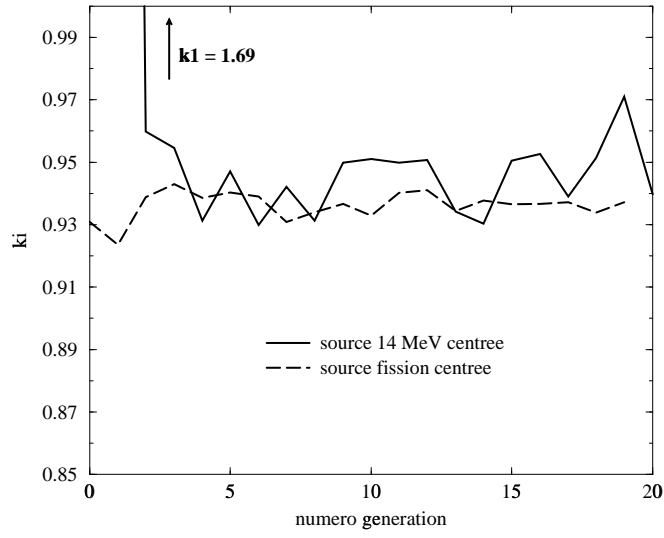


FIG. 2.7 – Comparaison des facteurs de multiplication k_i de MASURCA pour une source de fission scentrée et la source de neutrons de 14MeV du générateur SODERN (centrée également)

k_s source fissions spontanées centrée	0.94
k_s source fissions spontanées uniforme	0.94
k_s source 14 MeV	0.96
k_{eff}	0.94

TAB. 2.5 – Facteurs de multiplication de MASURCA simulés dans les conditions de l'expériences MUSE 3

2.8 montre le spectre en temps dans la zone centrale en plomb du réacteur MASURCA pour différentes réactivités.

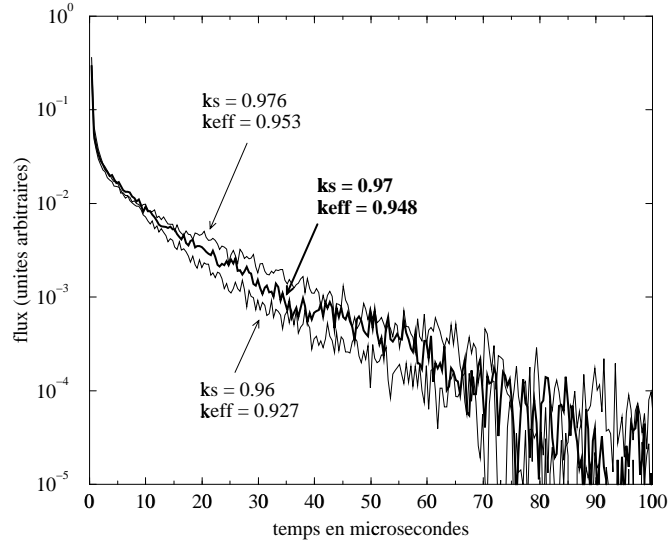


FIG. 2.8 – *Spectres en temps simulés des neutrons pour différentes valeurs du facteur de multiplication k_s .*

On observe que le spectre en temps des neutrons est exponentiel à partir d'un certain temps de l'ordre de $5 \mu s$. La déformation du spectre pour des temps inférieurs à $5 \mu s$ s'explique par la grande efficacité des neutrons source de 14 MeV, comme nous l'avons vu précédemment (cf figure 2.7). En superposant le spectre en temps total et le spectre en temps des neutrons source normalisé de la même manière (figure 2.9), on peut identifier la première partie de la courbe non exponentielle ($t < 5 \mu s$) comme étant due principalement aux neutrons source.

D'après les simulations précédentes et les comparaisons de l'évolution des facteurs k_i pour différents types de source, la déformation du spectre en temps dans les premières microsecondes est donc due aux réactions (n,2n) induites par des neutrons de plusieurs MeV sur les noyaux de plomb de la zone centrale modératrice. L'influence de la différence entre les facteurs de multiplication k_i et le facteur k_{eff} se fait sentir dans les premières microsecondes du spectre en temps. Passé ce délai, on n'est plus sensible qu'à la source de fission stabilisée en position dans le cœur du réacteur.

Si l'on se place au delà de quelques microsecondes, les neutrons se multiplient selon k_{eff} (cf figure 2.7), et d'après la relation 2.19 la pente des courbes de la figure 2.20 permet de remonter à la durée de vie de chaque génération de fission ; les résultats donnent une valeur de θ de l'ordre de $1 \mu s$.

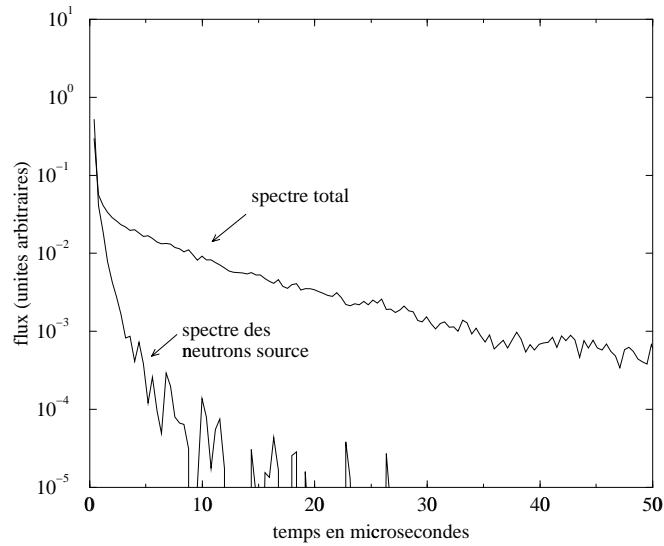


FIG. 2.9 – Comparaison du spectre en temps total des neutrons au spectre des neutrons source pour un facteur de multiplication $k_s = 0.97$

Impact de la durée de l'impulsion du générateur

La figure 2.10 montre la forme supposée du burst de neutrons délivré par le générateur SODERN utilisé lors de l'expérience MUSE 3.

La largeur en temps à mi-hauteur est de l'ordre de $3 \mu s$, mais l'impulsion est relativement étalée; environ 20% des neutrons sont produits $10 \mu s$ après le début du burst. Une étude préliminaire a consisté à étudier l'impact sur le spectre en temps de la largeur de l'impulsion de neutrons, représenté sur la figure 2.11.

On observe qu'avec le générateur SODERN, il paraît impossible d'espérer mesurer la déformation initiale du spectre en temps due à la différence d'efficacité des neutrons source. Cette déformation est essentielle dans l'étude d'un système sous-critique et dans la mesure du gain neutronique; à cette fin, la construction du générateur GENEPI (Générateur de Neutrons Pulsé Intense) a été entreprise à l'ISN pour les expériences à venir. Il devrait permettre dès l'expérience MUSE 4 de quantifier les différences entre facteurs de multiplication k_s et k_{eff} .

Ce générateur est actuellement installé à Grenoble; les premières mesures de largeur de l'impulsion de neutrons correspondent tout à fait à celles du cahier des charges, c'est à dire inférieure à $1 \mu s$. La modification du spectre en temps simulé dans MASURCA par cette impulsion est représentée sur la figure précédente (2.11). Cette étude a démontré l'intérêt d'un outil tel que GENEPI et a joué un rôle important lors de la décision de sa construction.

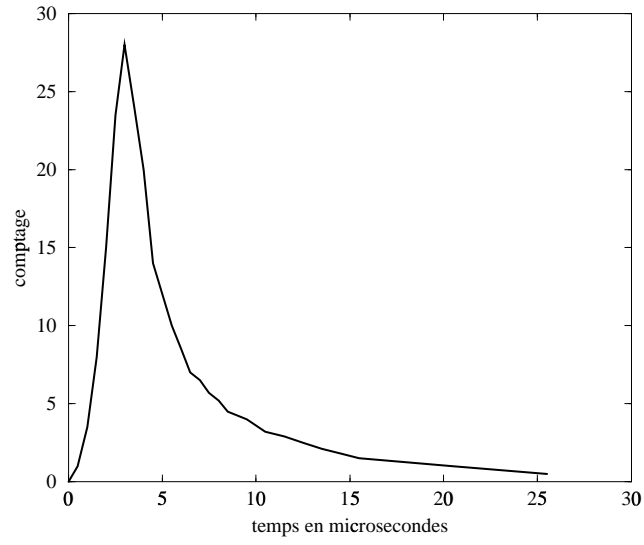


FIG. 2.10 – *Forme supposée du pulse de neutrons émis par le générateur SODERN*

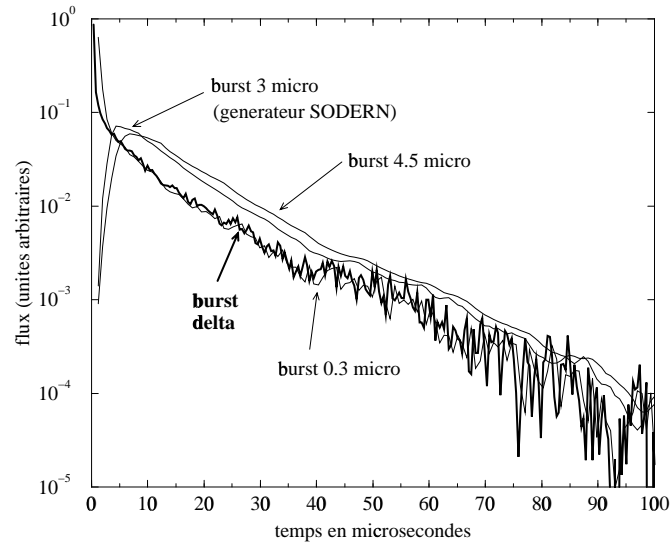


FIG. 2.11 – *Comparaison du spectre en temps du réacteur soumis à un pulse δ , et à différentes impulsions de largeur à mi-hauteur 0.3, 3. et 4.5 μ s.*

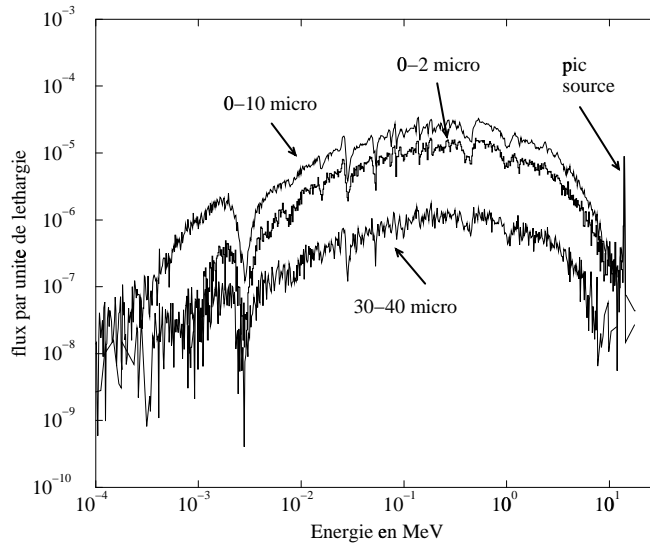


FIG. 2.12 – *Spectre en énergie pour différents intervalles de temps après une impulsion δ de neutrons source.*

2.4.3 Evolution du spectre en énergie en fonction du temps

Le groupe de Grenoble a effectué des mesures de spectre en énergie lors des expériences MUSE 2 et MUSE 3. Une étude a été réalisée afin de déterminer si la forme du spectre évoluerait en fonction du temps. La figure 2.12 montre le spectre en énergie pour différentes fenêtres en temps succédant au burst de neutrons.

Il apparaît qu'après $2 \mu\text{s}$ environ, la forme du spectre en énergie ne varie quasiment plus dans le domaine d'énergie supérieure à quelques dizaines de keV, gamme dans laquelle les mesures du groupe de Grenoble sont attendues. Compte tenu de la largeur de l'impulsion de neutrons délivrée par le générateur SODERN, il semble donc impossible de mesurer l'évolution dynamique de la forme du spectre énergétique du cœur de MASURCA.

2.5 Quelques résultats de l'expérience MUSE 3

La préparation des expériences MUSE par simulation a permis d'orienter le développement des détecteurs de l'ISN. L'expérience MUSE 3 avait pour but de tester les méthodes de détection et d'analyse mises au point. Malgré des mesures fortement perturbées par la présence de matériaux hydrogénés dans le générateur SODERN, il a été possible de valider et d'optimiser la méthode de mesure. Nous décrivons dans ce paragraphe l'effet du générateur de neutrons utilisé, dont la composition relativement précise n'avait pu être connue avant son installation à

MASURCA, et la mesure des spectres en énergie par un compteur proportionnel à ^3He .

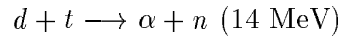
2.5.1 Le générateur de neutrons

Il semble nécessaire d'insister sur le fait que la composition, et notamment la quantité d'hydrogène dans le réacteur, n'ont été connues qu'après l'installation du générateur à l'intérieur du réacteur MASURCA. Des simulations plus précises ont alors été effectuées prenant en compte la description pseudo-homogène délivrée par le constructeur, et résumée dans le tableau 2.13.

Masse	19.4 kg
Hauteur	99.7 cm
Diamètre	8.8 cm
Intensité	10^8 n/s
Fréquence (Hz)	200 Hz
Masse totale matériaux hydrogénés (huile, résine et cables)	4.9 Kg

FIG. 2.13 – *Caractéristiques principales du générateur de neutrons GENIE-26 utilisé pour l'expérience MUSE 3.*

La réaction utilisée pour la production de neutrons est



Le générateur est placé de telle façon que la cible de tritium se trouve au centre du réacteur. La quantité d'huile importante n'ayant pas été prévue lors des études précédentes, de nouveaux calculs ont été nécessaires afin de déterminer l'impact de l'introduction d'une telle quantité d'hydrogène au centre d'un réacteur à neutrons rapides. La figure 2.14 montre le spectre en énergie simulé des neutrons issus du générateur.

On observe une forte dégradation du pic à 14 MeV correspondant aux neutrons produits sur la cible de tritium.

Spectres en temps

Les neutrons de basse énergie ont un effet tout à fait spectaculaire sur les formes des spectres en temps prédits lors de la préparation des expériences MUSE. La figure 2.15 montre le spectre en temps simulé avec et sans le générateur pour une même valeur du facteur de multiplication k_s .

La différence entre les deux pentes est très importante, et interdit toute extraction de facteurs de multiplication à partir de la forme des spectres en temps mesurés lors de MUSE 3. Ces résultats confirment la nécessité d'installer à MASURCA un générateur comme GENEPI, qui ne contient aucun élément hydrogéné dans la partie qui se trouvera à l'intérieur du réacteur.

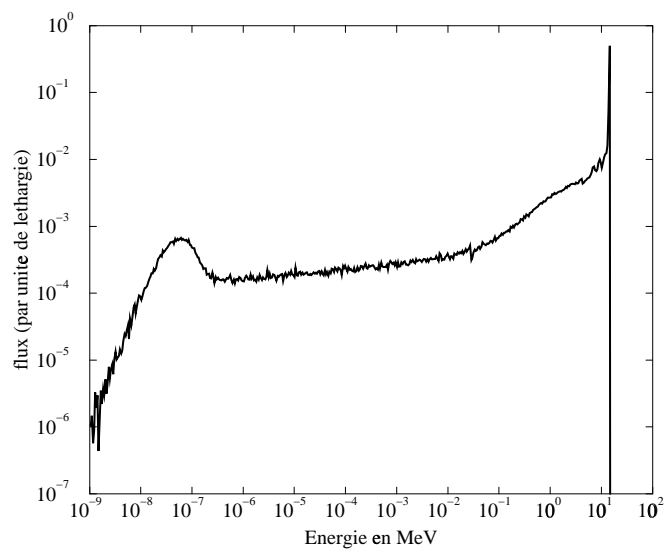


FIG. 2.14 – *Spectre en énergie des neutrons sortant du générateur SODERN.*

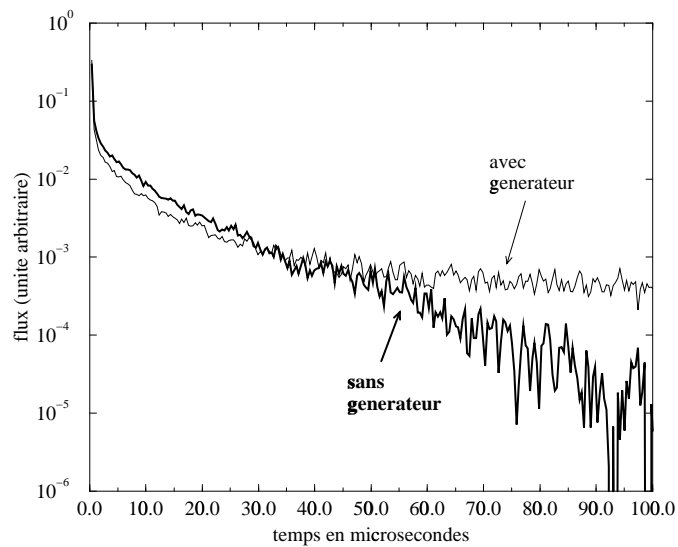


FIG. 2.15 – *Effet du générateur de neutrons SODERN sur les spectres en temps des neutrons.*

Il peut sembler intéressant de comprendre qualitativement l'effet de l'hydrogène contenu dans le générateur sur la forme des spectres en temps. Pour cela, on peut suivre le raisonnement très simplifié suivant : un neutron (source ou de fission) a une certaine probabilité p_H de diffuser sur l'hydrogène et de perdre une grande partie de son énergie. Ce neutron acquiert donc un retard lié à sa faible énergie noté Δt . Il peut éventuellement provoquer une nouvelle fission, les neutrons alors émis étant affectés du même retard Δt . Si l'on considère la source de neutrons de fission une fois stabilisée dans le cœur, on peut calculer l'allure du spectre en temps induit par un neutron caractéristique en suivant le schéma précédent. Un neutron caractéristique se multipliant selon le facteur de multiplication k acquiert un retard Δt toutes les $\frac{1}{p_H}$ générations en moyenne. En ce qui concerne le début de la multiplication, les neutrons ayant diffusé sur l'hydrogène du générateur ne parviennent dans le cœur qu'après quelques microsecondes ; avant ce délai, le facteur de multiplication apparent est donc de l'ordre de $k(1 - p_H)$ puisque seule une proportion $(1 - p_H)$ des neutrons source sort du générateur pendant cet intervalle de temps. Le spectre en temps décroît donc plus vite que dans le cas sans générateur où le facteur de multiplication est simplement k . Ce raisonnement simplifié est représenté sur la figure 2.16.

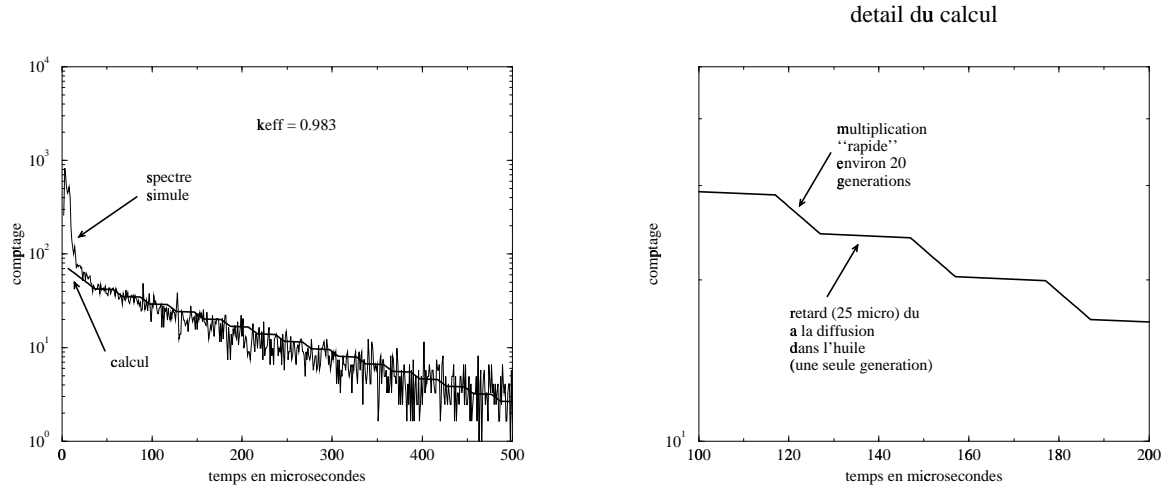


FIG. 2.16 – *Illustration du modèle qualitatif expliquant l'effet de l'huile du générateur SODERN sur la forme des spectres en temps simulés dans le cœur du réacteur.*

2.5.2 Mesures des spectres en temps

Les spectres en temps ont été réalisés par la détection des neutrons rapides : cette détection est effectuée grâce à un scintillateur plastique rapide NE102 (détection des protons de recul) couplé à un photomultiplicateur de petite taille Philips XP1918 placé dans un canal contigu à celui contenant le générateur de neutrons dans le plan médian du réacteur. La mesure se fait par l'intégration des charges de l'impulsion délivrée par le PM pendant la durée de cette impulsion.

L'instant de détection de cet évènement par rapport à l'impulsion de neutrons source est mesuré avec une horloge de pas en temps de 25 ns, ce qui permet d'enregistrer le spectre en temps pendant et après le burst de neutrons source. Le seuil de détection de cette mesure est fixé assez haut (environ 2 MeV) de façon à ne détecter que les grands dépôts d'énergie correspondant aux neutrons. D'autre part ce seuil haut permet également d'avoir un taux de comptage inférieur à un coup par burst, et donc de construire la forme de la réponse temporelle sans déformation due au temps mort.

Différents spectres en temps mesurés correspondant à différentes valeurs du facteur de multiplication sont représentés sur la figure 2.17. Les différents degrés de sous-criticité sont obtenus en utilisant les barres de contrôle composées essentiellement de bore. L'introduction d'une barre dans le cœur correspond à une chute de réactivité d'environ 2600 pcm.

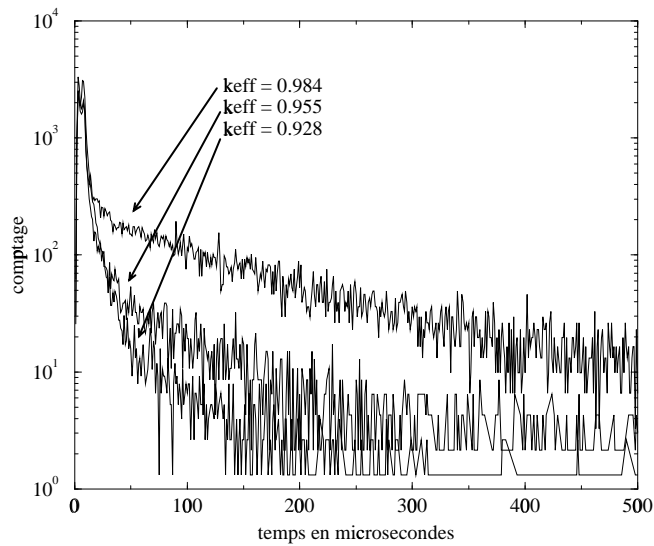


FIG. 2.17 – Exemple de spectres en temps mesurés lors de l'expérience MUSE 3

Afin de comparer les résultats des spectres en temps mesurés et simulés par MCNP, le rayon extérieur du cœur simulé a été modifié pour atteindre les réactivités correspondant aux configurations expérimentales. La figure 2.18 permet de comparer les résultats expérimentaux et les simulations pour une configuration donnée.

Etant donné la forte modification des spectres en temps des neutrons du cœur par l'huile et la résine présents dans le générateur de neutrons SODERN, il ne nous a pas semblé nécessaire de pousser plus en avant l'exploitation physique de ces résultats. L'efficacité des détecteurs et de l'analyse mise au point est démontrée, ce qui était le but principal de cette expérience. Nous avons également mis en évidence l'effet de la largeur de l'impulsion de la source de neutrons et

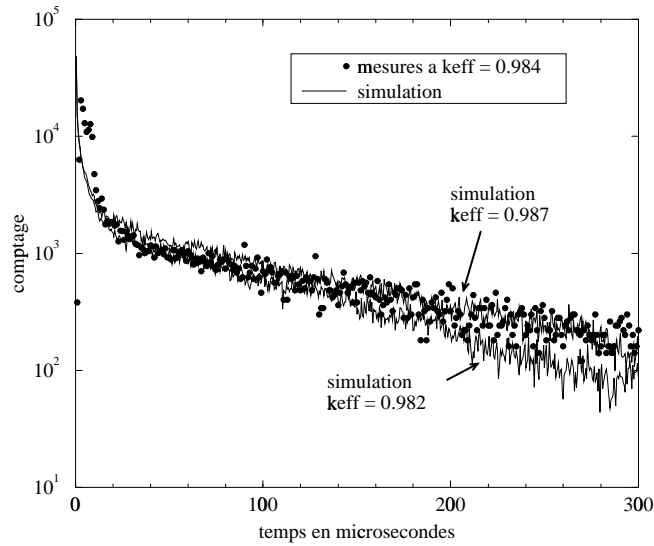


FIG. 2.18 – *Comparaison des spectres en temps expérimentaux et simulés pour des réactivités comparables.*

de l'introduction de matériaux hydrogénés dans le réacteur ; l'utilisation du générateur GENEPI permettra lors des expériences futures d'éliminer ces effets perturbateurs importants.

2.5.3 Spectres en énergie

Simulations

Les neutrons de basse énergie sortant du générateur ont très peu de chances de pénétrer profondément dans le cœur de MASURCA, du fait des fortes sections efficaces d'absorption des noyaux de combustible dans cette gamme d'énergie. Le spectre en énergie d'une zone suffisamment éloignée du centre du réacteur devrait être peu modifié par la présence d'hydrogène dans le générateur. Par contre, les spectres en énergie de la zone modératrice en plomb ou en sodium doivent être fortement perturbés par la présence du générateur. La figure 2.19 illustre ces deux aspects. La configuration choisie correspond à une zone modératrice en plomb.

Compteur proportionnel à ^3He

Afin de mesurer les spectres en énergie des neutrons dans le cœur de MASURCA il a été développé à l'ISN un petit compteur proportionnel à ^3He adapté aux conditions expérimentales. Ce compteur est schématisé sur la figure 2.20 : un neutron incident produit sur l' ^3He la réaction

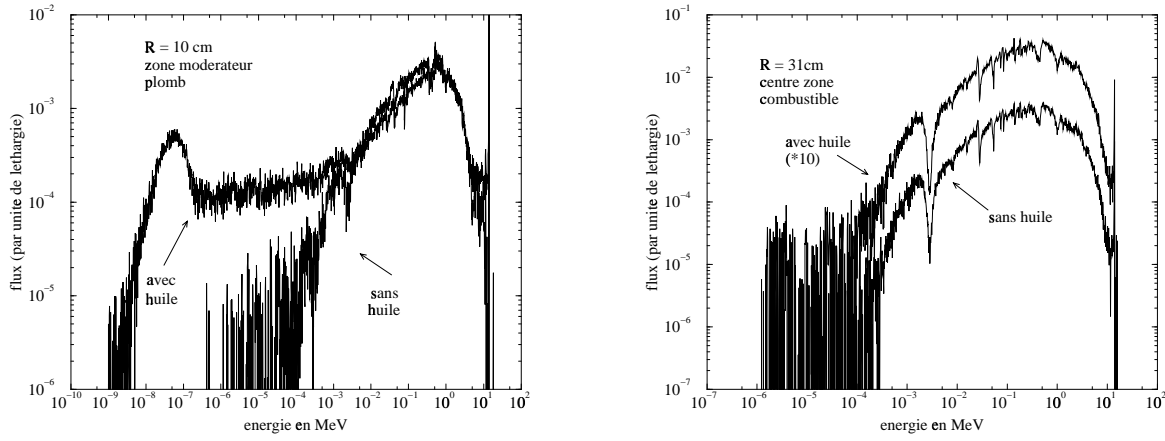


FIG. 2.19 – *Comparaison des spectres en énergie avec et sans générateur de neutrons, dans la zone modératrice en plomb, et au centre de la zone fissile ; pour la zone centrale du cœur, le spectre “avec générateur” est multiplié par 10 pour permettre la distinction entre les deux spectres.*

suivante :



Outre la faible pression d' ${}^3\text{He}$ (~ 60 mbar) le compteur est rempli d'argon (~ 3 bar) afin d'arrêter les particules chargées produites par cette réaction. Ces particules déposent alors leur énergie dans le compteur par ionisation du gaz. Les électrons ainsi libérés se multiplient dans le champ électrique du compteur et sont collectés sur le fil axial (anode), générant un signal électrique proportionnel à la somme des énergies du proton et du triton. L'énergie du neutron peut alors se déduire par :

$$E_n = E_p + E_t - Q \quad (2.23)$$

soit

$$E_n = E_{\text{detectee}} - Q \quad (2.24)$$

avec $Q=764$ keV. La résolution intrinsèque de la chaîne de mesure est d'environ 20 keV.

Plusieurs simulations ont été effectuées afin d'optimiser ce détecteur : la pression d' ${}^3\text{He}$ a pu être estimée à partir de simulations de transport neutronique Monte Carlo du réacteur, celle d'argon a été déterminée grâce à une modélisation du détecteur à l'aide du code GEANT [35] qui peut traiter l'interaction de particules chargées avec la matière.

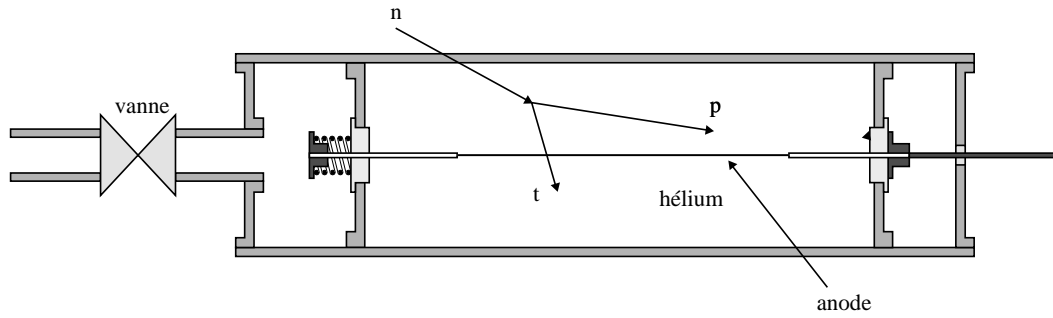


FIG. 2.20 – Description du compteur proportionnel à ^3He utilisé pour l'expérience MUSE 3.

Spectres en énergie expérimentaux

Les spectres acquis dans la zone en plomb entourant le générateur présentent un taux de comptage trop élevé, essentiellement dans la région des faibles énergies. L'intensité irrégulière et peu ajustable du générateur de neutrons est en partie responsable, mais la proximité des matériaux hydrogénés de la source a fortement accru le flux de neutrons thermiques (cf figure 2.14) pour lesquels notre compteur est très efficace (loi d'efficacité en $1/v$). L'empilement dû à ces taux de comptage élevés a empêché toute analyse des spectres dans la gamme d'énergie qui nous intéresse.

Les spectres acquis dans le combustible, c'est à dire dans une région moins polluée par les neutrons thermiques sont les plus exploitables. Néanmoins une sévère sélection des données a été nécessaire afin de s'affranchir des déformations des spectres dues au fort comptage. Les spectres ainsi obtenus ont été comparés aux spectres simulés par MCNP et convolués par la fonction réponse du détecteur qui a elle-même été déduite de mesures expérimentales calibrées en énergie. La figure 2.21 permet de comparer les résultats expérimentaux aux simulations effectuées.

L'accord entre les mesures et l'expérience est tout à fait acceptable et permet de valider le spectre "brut" (sans convolution par la réponse du détecteur) simulé par MCNP, lui-même représenté sur la figure 2.22 selon une échelle linéaire en énergie. Les dépressions du spectre aux alentours de 400 keV et de 1 MeV (seule la première est visible sur le spectre expérimental) sont dues à des résonances dans la section efficace de diffusion de l'oxygène, présent en grande quantité dans le réacteur.

2.5.4 Conclusions sur l'expériences MUSE 3

Les données acquises pendant l'expérience MUSE 3 ont permis de mieux connaître l'environnement du réacteur, notamment en matière de bruit de fond γ . L'analyse des données et les études par simulation menées en parallèle ont permis d'effectuer de nouveaux développements des détecteurs et de préparer de meilleures conditions expérimentales pour la prochaine expé-

MUSE 3

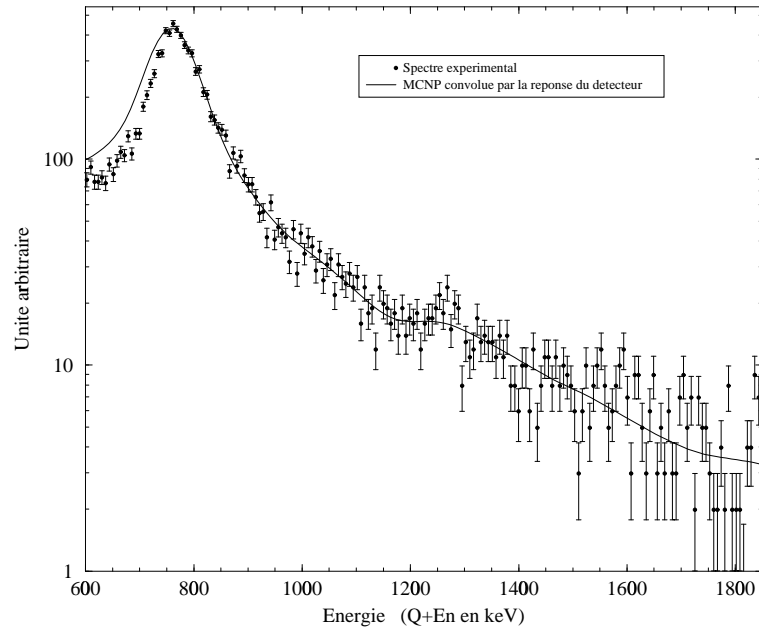


FIG. 2.21 – Comparaison du spectre en énergie expérimental et du spectre simulé convolué par la réponse du détecteur ^3He ; l'énergie du neutron est donnée par soustraction de 764 keV à l'énergie mesurée.

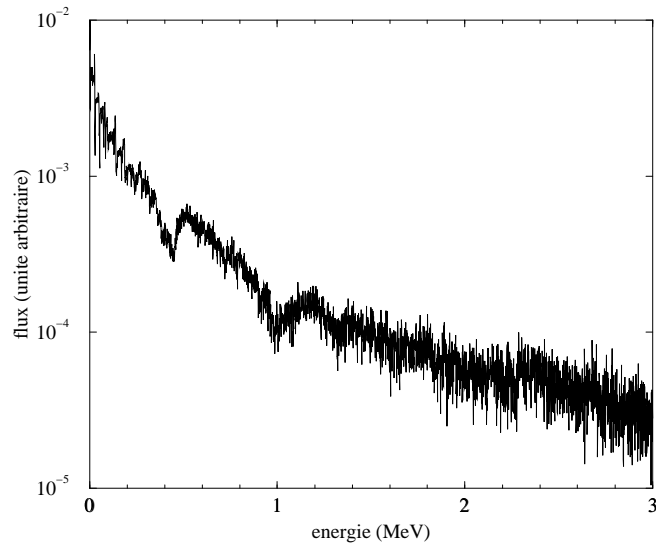


FIG. 2.22 – Spectre brut simulé par MCNP représenté en échelle linéaire en énergie.

rience, notamment en protégeant les canaux de mesure par du plomb afin de diminuer fortement la perturbation des détecteurs par le bruit de fond γ . L'expérience MUSE 4 doit commencer en automne 1999 avec le générateur de neutrons GENEPI. Ce générateur représente une avancée considérable par rapport à l'expérience MUSE 3, du fait de son pulse de neutrons très court ($< 1 \mu\text{s}$), et de l'absence d'hydrogène dans toute la partie pénétrant dans le cœur de MASURCA. Les nouvelles mesures permettront d'étudier précisément la différence de multiplication des neutrons source mise en évidence par les simulations et de déterminer expérimentalement le spectre en énergie dans toutes les zones du réacteur, y compris la zone modératrice en plomb simulant la cible de spallation. Elles apporteront des connaissances très importantes sur la physique des réacteurs sous-critiques et sur le comportement neutronique du plomb en réacteur en tant que caloporteur et cible de spallation.

2.6 Les avantages d'un système hybride

Les avantages apportés par la sous-criticité du réacteur sont multiples et souvent liés les uns aux autres. Nous tentons ici d'en faire une liste détaillée et de faire le lien avec les différentes utilisations possibles de ces systèmes.

2.6.1 Souplesse de pilotage

La première conséquence de la sous-criticité du système est la disparition du risque d'emballlement du réacteur; l'arrêt du faisceau au moindre incident stoppe la réaction en chaîne en quelques microsecondes. Les risques de soudaines montées en puissance sont fortement réduits, ce qui limite fortement les conséquences d'un accident de réactivité. Ces systèmes ne nécessitent plus de barre de pilotage, ce qui n'exclut pas l'utilité de barres d'arrêt d'urgence ou d'ajustement de réactivité.

2.6.2 Tout type de combustible utilisable

La plupart des contraintes existant sur les combustibles utilisés en réacteur critiques disparaissent dans le cas d'un système sous-critique piloté par accélérateur. La première raison est que le réacteur n'est plus piloté grâce aux neutrons retardés; la proportion de neutrons retardés n'est donc plus limitative et tout type de combustible est envisageable, notamment, des combustibles riches en actinides mineurs ou constitués uniquement de plutonium par exemple.

D'autre part, il pourrait être possible sous certaines conditions, d'accepter des coefficients de vide ou de température positifs. On peut tout à fait envisager de fixer une réactivité maximale du système, et vérifier que cette valeur est inaccessible quelles que soient les modifications subies par le système lors d'un incident. Si les coefficients de vide et de température sont positifs, il suffira de réduire la réactivité nominale de telle sorte que la réactivité maximale admissible ne

soit en aucun cas atteinte. Cette contrainte éventuelle sur la valeur maximale de réactivité n'est pas gênante dans le cas d'un réacteur hybride dédié à l'incinération d'actinides par exemple, puisqu'un fort gain n'est pas la finalité du système. Par contre, elle devient effective si l'on envisage des systèmes hybrides dédiés à la production d'énergie, où un gain relativement élevé est nécessaire pour assurer la rentabilité du système.

On peut donc envisager d'utiliser tout type de combustible, indépendamment de son comportement vis à vis des effets de température et de vide. En revanche, ces comportements peuvent éventuellement être un frein à l'utilisation de certains combustibles dans un réacteur nécessitant un gain élevé (filère productrice d'énergie) et demandent donc d'être très bien connus, que ce soit expérimentalement ou par simulation.

2.6.3 Economie de neutrons

On peut quantifier le nombre de neutrons disponibles dans un réacteur hybride pour la transmutation comme suit [10]: le nombre de neutrons nécessaire pour créer N_{fis} fissions vaut $\frac{\Sigma_{abs}}{\Sigma_{fis}}$ où Σ_{abs} et Σ_{fis} sont les sections efficaces macroscopiques d'absorption et de fission du système. D'après les relations 2.7 et 2.11, on connaît le nombre de neutrons et de fissions produits par N_s neutrons de spallation ; on calcule ainsi le nombre de neutrons disponibles pour la transmutation dans le réacteur, c'est à dire le nombre de neutrons qui ne servent pas à produire une fission (les quantités sont toujours calculées pour N_s neutrons source):

$$N_{disp} = N_{tot} - N_{fis} \frac{\Sigma_{abs}}{\Sigma_{fis}} = \frac{N_s}{1 - k_s} \left(1 - \frac{k_s}{\nu} \frac{\Sigma_{abs}}{\Sigma_{fis}} \right) \quad (2.25)$$

en notant $\frac{\Sigma_{abs}}{\Sigma_{fis}} = 1 + \alpha$ on obtient :

$$N_{disp} = \frac{N_s}{1 - k_s} \left(1 - \frac{k_s}{\nu} (1 + \alpha) \right) \quad (2.26)$$

α représente le nombre de neutrons par fission, soit absorbés lors d'une réaction autre qu'une fission, soit perdus. Dans un système régénérateur, α prend en compte le nombre de neutrons (environ 1) capturés par la matrice fertile pour produire un noyau fissile. Cette dernière relation peut s'écrire sous la forme :

$$N_{disp} = N_s + N_{fis}(\nu - 1 - \alpha) = N_{fis} \left(\nu \frac{1 - k_s}{k_s} + (\nu - 1 - \alpha) \right) \quad (2.27)$$

Cette formule s'applique à un réacteur critique et s'écrit alors :

$$N_{disp}^c = N_{fis}(\nu - 1 - \alpha) \quad (2.28)$$

Les relations 2.27 et 2.28 font apparaître une économie de neutrons favorable au système sous-critique. Une application numérique peut aider à se fixer un ordre d'idée sur les différents

termes intervenant dans ces deux relations ; on choisit un système $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$ et on normalise au nombre de fission :

– Cas sous critique

$$k_s = 0.98$$

$$\nu = 2.5$$

$$1 + \alpha = 2.4$$

$$\nu \frac{1 - k_s}{k_s} = 0.05$$

$$\nu - 1 - \alpha = 0.12$$

$$N_{disp} = 0.17$$

– Cas critique

$$N_{disp}^c = 0.12$$

Il apparaît que la source externe joue un rôle significatif dans le nombre de neutrons disponibles pour la régénération du noyau fissile ou pour la transmutation. Nous n'avons pas pris en compte dans cette comparaison la consommation supplémentaire de neutrons nécessaire au pilotage d'un réacteur critique, qui induit une augmentation du facteur α comparé au cas sous-critique et augmente l'avantage du réacteur hybride en terme d'économie de neutrons. On estime à environ 0.1 neutrons par fission consommés dans les barres de pilotage d'un réacteur critique, ce qui signifie que la régénération de l' ^{233}U peut être délicate dans un réacteur critique. Cette remarque nécessiterait d'être approfondie afin de déterminer si la sous-criticité est réellement incontournable si l'on veut utiliser le cycle thorium en réacteur rapide.

D'une façon plus générale, nous venons de voir que l'économie de neutrons est favorable dans un système hybride et permet d'envisager d'utiliser le surplus de neutrons pour transmuter des produits de fission à vie longue dans la zone réflectrice du réacteur [36, 37].

2.6.4 Différentes utilisations d'un réacteur hybride

Comme nous l'avons vu précédemment, la sous-criticité des réacteurs dans les systèmes hybrides pilotés par accélérateur amène les avantages suivant :

- Souplesse de pilotage du réacteur sans nécessité d'une fraction élevée de neutrons retardés
- Sûreté accrue par la sous-criticité intrinsèque en cours de fonctionnement
- Economie de neutrons favorable

Ces avantages ont conduit les scientifiques à proposer deux types d'utilisation de ces systèmes. La première correspond à la production d'énergie qui consisterait à utiliser des réacteurs hybrides sur une grande échelle, en choisissant le combustible qui produit le moins de déchets, et qui assurerait à l'énergie nucléaire une large pérennité. La seconde utilisation proposée est l'incinération des déchets en cours d'accumulation, produits par la filière actuelle. Cette utilisation peut se généraliser dans le cas où l'on veut réduire la radiotoxicité de l'inventaire d'une filière mise à l'arrêt comprenant beaucoup de matière fissile, comme c'est le cas pour les filières à neutrons rapides envisageables.

Chapitre 3

Description des simulations, étude statistique

3.1 Code Monte Carlo, MCNP

3.1.1 Principe de la méthode Monte Carlo

Le principe de la méthode dite de Monte Carlo est de simuler la propagation d'une particule dans la matière, son mouvement étant régi par des lois bien connues. Nous pouvons résumer la façon dont un code Monte Carlo fonctionne, dans le cas du transport d'un neutron dans une géométrie quelconque découpée en cellules, de la façon suivante :

- 1 • Calcul du libre parcours moyen λ défini par

$$\lambda = \frac{1}{\Sigma^{tot}} \quad (3.1)$$

où Σ^{tot} est la section efficace macroscopique d'interaction du milieu

$$\Sigma^{tot} = \sum_{\text{noyau } i} N_i \sigma_i^{tot} \quad (3.2)$$

avec N_i le nombre de noyaux i par cm^3 , et σ_i^{tot} la section efficace microscopique totale d'interaction du noyau i en cm^2 .

- 2 • Tirage de la distance parcourue ℓ avant la première interaction selon la loi

$$p(\ell) = \frac{1}{\lambda} e^{-\frac{\ell}{\lambda}} \quad (3.3)$$

soit

$$\ell = -\lambda \ln(1 - \xi) \quad (3.4)$$

où ξ est un nombre aléatoire tiré uniformément dans $[0,1[$.

- 3 • Si le point d'interaction n'est pas dans la même cellule, on se place à la première interface rencontrée sur la ligne de vol du neutron, et on recommence à partir de la phase 1. Si le neutron n'a pas changé de cellule, on tire au hasard le type de noyau k sur lequel la réaction a lieu en tirant un nombre ξ uniformément dans $[0,1[$; le noyau k est alors sélectionné par le test :

$$\sum_{i=1}^{k-1} \Sigma_i^{tot} < \xi \cdot \sum_{i=1}^N \Sigma_i^{tot} < \sum_{i=1}^k \Sigma_i^{tot} \quad (3.5)$$

où N est le nombre total de noyaux présents, Σ_i^{tot} la section efficace macroscopique totale du noyau i et ξ un nombre tiré aléatoirement dans l'intervalle $[0,1[$.

- 4 • On détermine ensuite le type de réaction r de la même manière :

$$\sum_{i=1}^{r-1} \sigma^i < \xi \cdot \sum_{i=1}^{n_{tot}} \sigma^i < \sum_{i=1}^r \sigma^i \quad (3.6)$$

où σ^i est la section efficace de la réaction i pour le noyau déjà déterminé et n_{tot} le nombre total de réactions possibles pour ce noyau.

- 5 • Il reste ensuite à déterminer les conditions de "sortie" du neutron. Dans le cas d'une réaction absorbante, l'histoire s'arrête là ; dans le cas d'une réaction non absorbante, un ou plusieurs neutrons sont réémis. Leur énergie est le plus souvent tirée au hasard selon des lois dépendant du type de réaction qui les a créés, par exemple :

- énergie d'un neutron issu de fission :

$$p(E) = \sqrt{E} e^{-\frac{E}{a}} \text{ avec } a = 1.2395 \text{ MeV} \quad (3.7)$$

- énergie d'un neutron issu d'une collision élastique

$$E_{sortie} = E_{entrée} \frac{1 + A^2 + 2A \cos \theta_{cm}}{(1 + A)^2}$$

avec $E_{entrée}$ l'énergie incidente du neutron, θ_{cm} l'angle dans le centre de masse entre les particules incidente et sortante, et A le nombre de masse du noyau sur lequel le neutron a diffusé.

Ce schéma est bien entendu simplifié et la plupart des codes Monte Carlo utilisés actuellement permettent, par différentes méthodes statistiques, d'accélérer la convergence.

3.1.2 MCNP

MCNP (Monte Carlo N Particles) est un code de transport Monte Carlo développé à Los Alamos par l'équipe de John Hendricks et Judith Briesmeister [38]. La première version MCNP1A date de Août 1977, la dernière version MCNP4B, que nous utilisons, est parue en février 1998. Ce code permet de simuler le transport de neutrons d'énergie inférieure à 20 MeV, de photons et d'électrons. C'est un code reconnu et validé, qui peut être utilisé dans de nombreux domaines (calculs de criticité, radio-protection, etc...). Nous n'utiliserons dans ce travail que la partie traitant du transport de neutrons.

3.2 Choix de la géométrie

Il a été nécessaire de faire des choix concernant les caractéristiques géométriques des réacteurs utilisés lors des simulations. La plupart de ces caractéristiques ont été paramétrisées afin de comparer directement les différents types de combustibles étudiés. Nous détaillons dans ce paragraphe les caractéristiques générales que nous avons choisies.

3.2.1 Géométrie générale

Le système simulé comprend une cible de spallation, une zone multiplicatrice (cœur du réacteur) et une partie réflectrice comme le montre la figure 3.1. Chaque partie sera décrite indépendamment.

3.2.2 Cible de plomb et source de spallation

La cible de spallation a été définie à partir des caractéristiques de la source de neutrons de spallation utilisée. Cette source provient d'une simulation effectuée avec le code Fluka développé au CERN [39] validé dans l'expérience TARC, et correspond à un faisceau de protons de 1 GeV projeté sur une cible épaisse de plomb naturel (cylindre de 50 cm de hauteur et 20 cm de rayon). La figure 3.2 décrit les distributions énergétique et spatiale des neutrons que nous utiliserons comme neutrons source. À partir de la distribution spatiale de la source, on définit le rayon externe de la cible de spallation de nos simulations, qui sera fixé à 15 cm. On choisit en fait le plus petit rayon qui contient la quasi totalité des neutrons de spallation afin de minimiser les surfaces de fuite que sont les surfaces inférieure et supérieure de la cible.

Le passage du faisceau est représenté par un trou de 7.5 cm de rayon. L'interface faisceau/plomb est située à une cote $z = 20$ cm de manière à ce que le barycentre de la source de neutrons de spallation soit au centre du réacteur ($z = 0$).

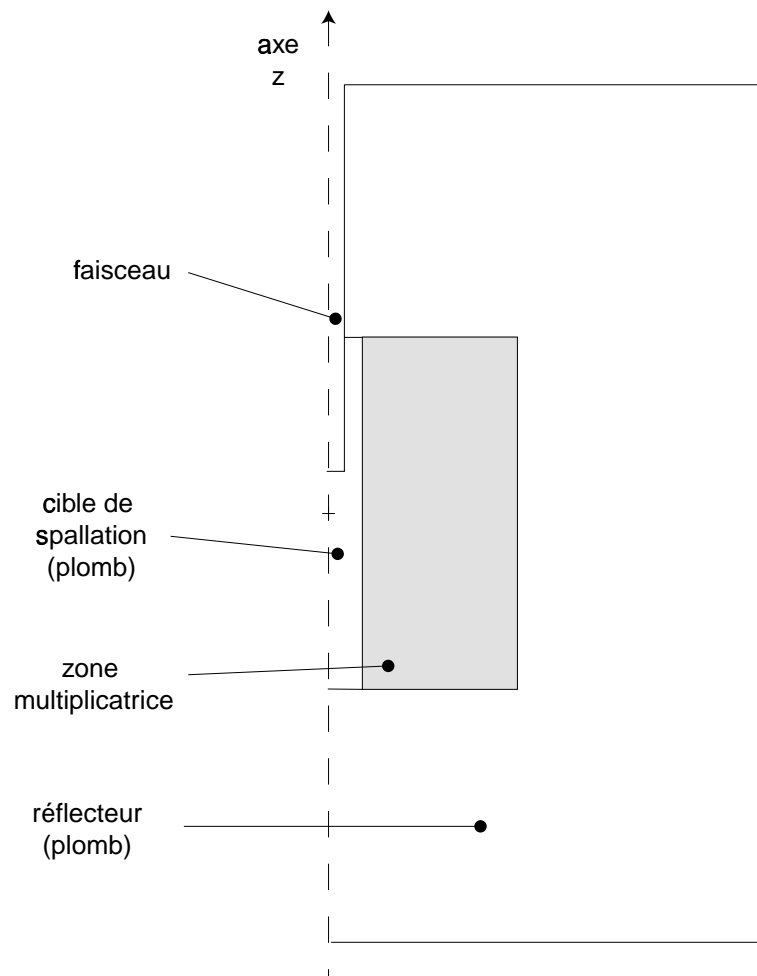


FIG. 3.1 – *Description de la géométrie générale utilisée lors des simulations*

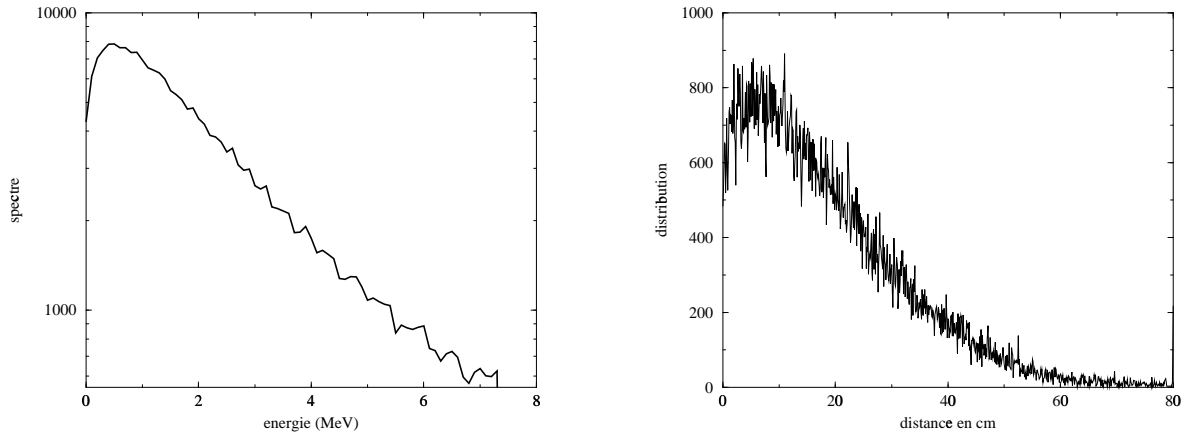


FIG. 3.2 – *Spectre en énergie et distribution spatiale selon l'axe de la cible, de la source de neutrons utilisée.*

3.2.3 Cœur

Assemblages de combustible

La géométrie des assemblages de combustible est inspirée du projet de C. Rubbia [12]. Le combustible se présente sous forme d'aiguilles gainées d'acier (figure 3.3). Ces aiguilles forment un réseau hexagonal inscrit dans un élément lui-même hexagonal. Le cœur du réacteur est pavé de ces éléments hexagonaux dont la largeur est d'environ 25 cm. Le nombre d'aiguilles est déterminé à partir de la proportion volumique de caloporteur, qui est paramétrisée.

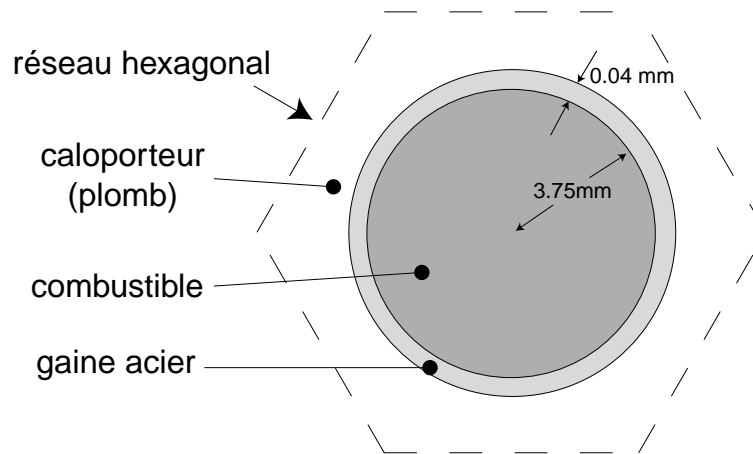


FIG. 3.3 – *Description des aiguilles de combustible qui pavent la zone multiplicatrice (la proportion de caloporteur est de 50 %)*

Proportions volumiques

Pour définir les caractéristiques globales des assemblages et du cœur nous parlerons en proportion volumique. C'est en effet la thermique qui conditionne la quantité de plomb nécessaire à l'évacuation de la chaleur du cœur, les grandeurs intervenant étant des capacités calorifiques et des débits, directement reliées au volume de caloporteur. La proportion volumique de plomb dans le cœur sera fixée la plupart du temps à 50%. En ce qui concerne la composition du combustible, nous parlerons alors en termes de proportion atomique, qui est la grandeur adaptée à l'étude neutronique du combustible.

Rapport entre hauteur et rayon du cœur

Pour un volume V fixé, le rapport entre le rayon et la hauteur du cœur est déterminé de façon à optimiser l'efficacité des premiers neutrons. Cela consiste à minimiser les surfaces extérieures du cœur, y compris les surfaces supérieure et inférieure de la cible:

$$S_{fuite} = 2\pi Rh + 2\pi R^2 \quad (3.8)$$

Comme le volume V vaut $\pi(R - R_{int})^2 h$ (où R_{int} est le rayon interne de la zone multiplicatrice), on a :

$$S_{fuite} = \frac{2\pi RV}{\pi(R - R_{int})^3} + 2\pi R^2 \quad (3.9)$$

Ainsi

$$\frac{dS_{fuite}}{dR} = \frac{2}{(R - R_{int})^3} [V(R - R_{int}) - 2VR + 2\pi R(R - R_{int})^3] \quad (3.10)$$

La résolution de

$$V(R - R_{int}) - 2VR + 2\pi R(R - R_{int})^3 = 0 \quad (3.11)$$

sera faite par dichotomie et h sera déterminée par $h = \frac{V}{\pi(R - R_{int})^2}$.

Le seul paramètre géométrique du cœur est maintenant le volume V . On vérifie que cette configuration minimise les fuites de neutrons du cœur en traçant k_s en fonction de la hauteur du cœur pour un réacteur de volume donné (figure 3.4). On observe que le couple (R, h) donné par la minimisation des surfaces de fuite correspond au k_s maximal. Cette minimisation a d'autre part l'avantage de donner un sens physique à la détermination de h et de R .

Cette méthode de détermination de h et R s'inscrit dans l'optique d'un démonstrateur, pour lequel on tente de réduire la taille au maximum tout en utilisant au mieux les neutrons qui tendent à s'échapper du cœur. Cependant, cette minimisation des surfaces de fuite n'est pas toujours pertinente, par exemple si l'on cherche à avoir un flux élevé dans le réflecteur afin de transmuter au maximum des produits de fission à vie longue. Nous utiliserons donc cette technique de minimisation pour l'étude des différentes filières de combustible ; par contre, en ce qui concerne l'étude d'un incinérateur, nous laisserons ce facteur géométrique relativement libre afin de répondre à différents problèmes qui seront exposés par la suite.

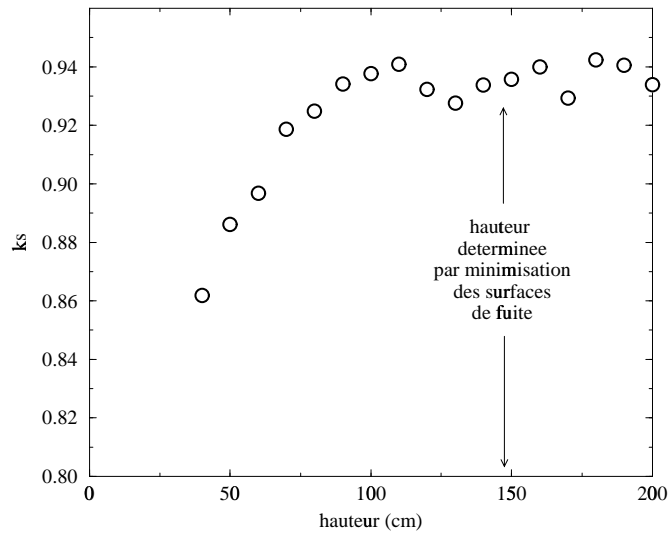


FIG. 3.4 – *Comportement du facteur de multiplication en fonction de la hauteur du cœur pour un volume V fixé (3 m^3).*

3.2.4 Réflecteur

La taille du réflecteur doit être suffisamment grande afin de remplir pleinement son rôle, à savoir, minimiser les fuites hors du cœur multiplicateur. Cependant, on ne peut pas envisager un réflecteur trop grand, pour des raisons évidentes de coût et de taille du réacteur.

Une étude a donc été menée afin de déterminer quelle était la taille minimale du réflecteur qui assurait la minimisation du nombre de neutrons sortant de la zone multiplicatrice du réacteur. La figure 3.5 montre le comportement du facteur de multiplication k_s en fonction de l'épaisseur e du réflecteur (en rayon et hauteur), pour différents volumes de cœur. L'exemple choisi est un cœur d'uranium naturel et de plutonium, la proportion volumique de plomb dans la zone multiplicatrice est de 50% et la concentration en plutonium de 15%.

Comme on pouvait s'y attendre, un cœur très petit (0.35 m^3 par exemple) a des fuites très importantes et nécessite un réflecteur très épais (comparé au rayon du cœur). Inversement, un cœur de taille importante nécessitera un réflecteur d'épaisseur moindre (toujours comparée au rayon du cœur) pour voir son facteur de multiplication k_s optimisé. La courbe permet de fixer l'épaisseur du réflecteur à 120 cm à partir de laquelle k_s se stabilise vers sa valeur maximale. Cela signifie que les neutrons diffusant dans la zone réflectrice au delà de 120 cm ont très peu de chance de revenir dans la zone multiplicatrice pour créer une fission, la probabilité de fuir ou d'être capturé dans le plomb étant prépondérante dans cette zone. La présence ou non de réflecteur au-delà de 120 cm n'influence plus la multiplication globale des neutrons, ce qui

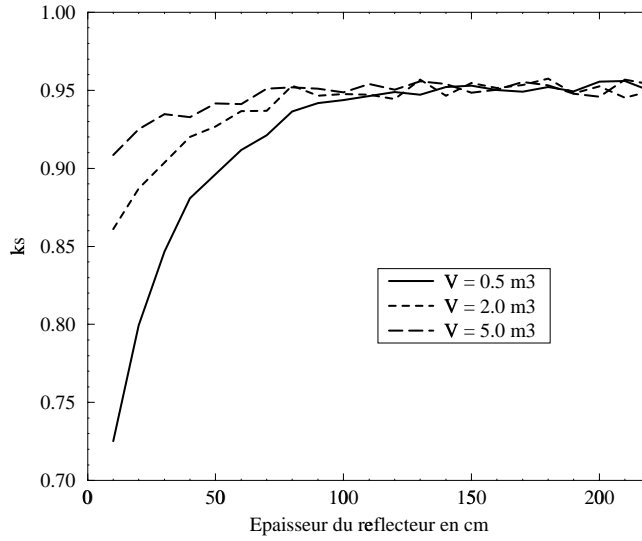


FIG. 3.5 – Evolution du facteur de multiplication k_s en fonction de l'épaisseur du réflecteur pour différents volumes de zone multiplicatrice.

explique ce phénomène de saturation du facteur de multiplication k_s observé. Notons que cette épaisseur minimale de 120 cm du réflecteur en plomb, ne dépend quasiment pas du volume du cœur, même si la forme de la courbe k_s en fonction de l'épaisseur varie sensiblement.

3.3 Traitement de l'évolution

MCNP est un code de simulation statique, c'est à dire qu'il ne traite pas l'évolution des matériaux soumis à un flux de neutrons. Une partie importante de ce travail a été de coupler ce code statique à un programme d'évolution décrit dans cette partie.

3.3.1 Définitions

Nous serons amenés à parler de sections efficaces moyennes et de flux intégrés. Une définition précise de ces quantités permet d'éviter toute confusion sur leur interprétation. Les nombres de réactions s'écrivent dans le cas général

$$N_{r_{\text{éac}}} = \int_E \int_{\vec{r}} n_i(\vec{r}) \sigma(E) \phi(E, \vec{r}) dE d^3\vec{r} \quad (3.12)$$

où $n_i(\vec{r})$ est le nombre de noyaux i à la position \vec{r} par unité de volume, $\sigma(E)$ la section efficace différentielle du noyau i pour la réaction considérée et $\phi(E, \vec{r})$ le flux différentiel à l'énergie E et à la position \vec{r} . Le flux dépend à la fois de l'énergie et de la position dans le réacteur, ce qui

peut amener des confusions lorsque l'on parle de flux moyen ou de sections efficaces moyennes. Dans les parties à venir, nous nous efforcerons de nous plier aux notations suivantes : les sections efficaces moyennes sont notées simplement σ et correspondent à une moyenne sur l'énergie et sur la position pondérée par le spectre neutronique différentiel :

$$\sigma = \frac{\int_E \int_{\vec{r}} \sigma(E) \phi(E, \vec{r}) dE d^3\vec{r}}{\int_E \int_{\vec{r}} \phi(E, \vec{r}) dE d^3\vec{r}} \quad (3.13)$$

Le flux intégré représente la valeur du flux différentiel intégré sur l'énergie et moyenné sur la position et sera noté ϕ :

$$\phi = \frac{1}{V} \int_E \int_{\vec{r}} \phi(E, \vec{r}) dE d^3\vec{r} \quad (3.14)$$

3.3.2 Traitement des produits de fission

Un des premiers problèmes rencontrés est le traitement des produits de fission. Les bases de données accessibles à MCNP (ENDF-VI) ne contiennent pas toutes les sections efficaces des produits de fission des différents noyaux de combustible. Cependant, il existe dans ENDF-VI trois sections efficaces de produits de fission moyennes. Après examen de ces sections efficaces, et comparaisons avec les sections efficaces de la librairie JEF2.2 de tous les produits de fission, nous avons décidé de choisir une combinaison linéaire de deux sections efficaces moyennes de produits de fission de ENDF-VI (codées 50120.35c et 45117.90c) qui reproduit au mieux les sections efficaces déterminées à partir de JEF2.2 et des distributions de produits de fission de chaque noyau étudié. L'utilisation d'une section efficace moyenne de produits de fission est délicate puisqu'il devient difficile de traiter la disparition de ces produits de fission par capture neutronique. Une étude détaillée a été menée afin de déterminer dans quelles conditions l'utilisation d'une section efficace moyenne de produits de fission était possible.

Nous choisissons de décrire la distribution en masse des produits de fission 100 jours après leur création (figure 3.6) afin d'éliminer les produits de fission à vie courte, qui toutefois, peuvent avoir un impact sur la réactivité. Il apparaît que cette distribution est sensiblement différente pour les deux noyaux fissiles considérés (^{233}U et ^{239}Pu), principalement pour les produits de fission de masse faible. En effet, le pic de la distribution correspondant aux masses élevées est centré sur un nombre magique, l'augmentation de six unités de masse entre l' ^{233}U et le ^{239}Pu vient alors modifier le maximum correspondant aux masses plus faibles.

La figure 3.7 montre les sections efficaces moyennes de capture (n, γ) des produits de fission prépondérant (c'est à dire pour lesquels le produit $N\sigma^{cap}$ est le plus important). On observe que la section efficace moyenne de ces produits de fission tend à augmenter avec la masse au voisinage du maximum de la distribution correspondant aux masses faibles. On s'attend donc à obtenir une section efficace moyenne des produits de fission plus élevée pour le ^{239}Pu que pour

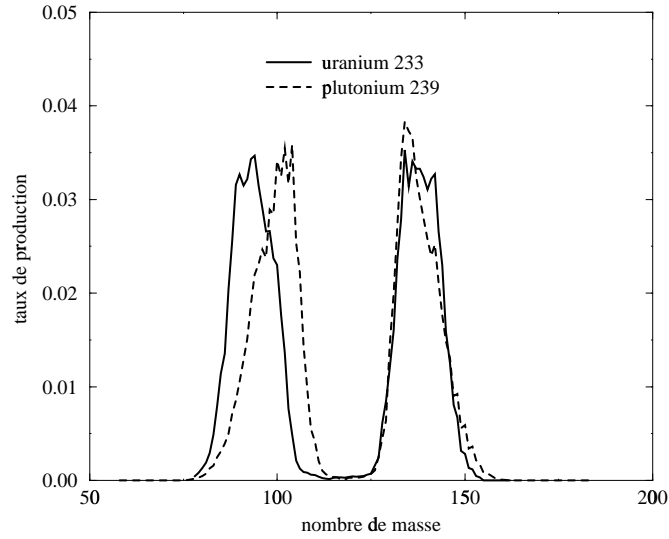


FIG. 3.6 – *Distribution en masse des produits de fission des noyaux ^{233}U et ^{239}Pu 100 jours après leur création.*

Noyau fissile	σ^{cap} des produits de fission
^{233}U	0.15
^{239}Pu	0.26

TAB. 3.1 – *Valeur des sections efficaces moyennes déterminées à partir de la librairie JEF2.2 pour ^{233}U et le ^{239}Pu*

^{233}U .

Nous pouvons quantifier cette différence et suivre l'évolution dans le temps de chacune de ces sections efficaces moyennes dans un spectre rapide sur la figure 3.8. Il apparaît que les sections efficaces considérées sont relativement stables pendant une durée de plusieurs années.

Nous choisissons donc pour chacun des noyaux fissiles considérés la combinaison linéaire de deux sections efficaces dont on dispose dans la base propre à MCNP qui représente le mieux les sections efficaces déterminées à partir des distributions massiques des produits de fission et des sections efficaces présentes dans la librairie JEF2.2. Les sections moyennes des produits de fission utilisées sont représentées dans le tableau 3.1.

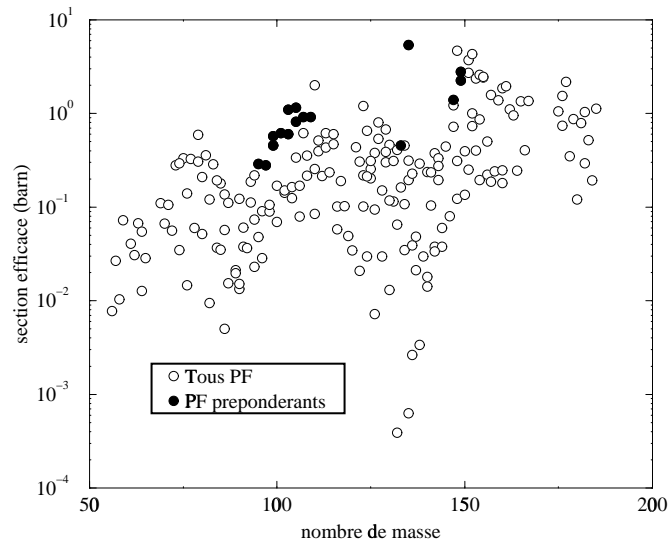


FIG. 3.7 – *Sections efficaces moyennes de capture (n, γ) des produits de fission en fonction de leur masse; on repère les produits de fission apparaissant en quantité importante pour les deux noyaux fissiles considérés ^{233}U et ^{239}Pu .*

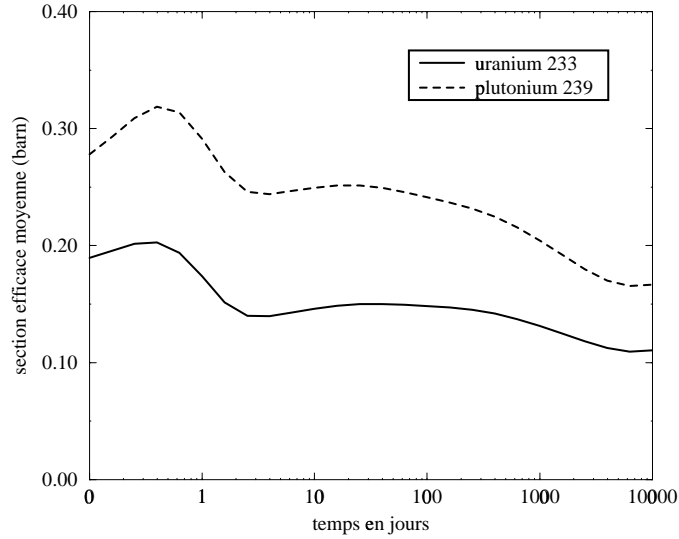


FIG. 3.8 – *Evolution de la section efficace moyenne de capture (n, γ) des produits de fission de ^{233}U et du ^{239}Pu créés à l'instant $t = 0$ dans un flux neutronique rapide.*

3.3.3 Traitement de l'évolution des matériaux

Cycle utilisé

Les matériaux dont on suit l'évolution sont tous les noyaux au delà du ^{230}Th dont la section efficace est disponible dans MCNP, ce qui exclut les noyaux dont la durée de vie est trop courte. Le cycle comprend 39 noyaux. La décroissance des noyaux dont la durée de vie est supérieure à 100000 ans n'est pas prise en compte lors de l'évolution du combustible en réacteur, mais sera bien entendu prise en compte lors de l'évolution de la radiotoxicité calculée sur plusieurs millions d'années.

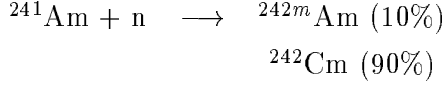
Densité de puissance

Lors de l'évolution de chaque combustible étudié, nous fixons la densité de puissance à 330 W par cm^3 de combustible. Cette valeur permet comme nous le verrons par la suite d'assurer une densité de puissance maximale (au centre du réacteur) de l'ordre de 600 W/cm^3 , ce qui est tout à fait acceptable d'un point de vue thermique. Cette contrainte a deux effets importants. D'une part la puissance du réacteur est fixée tout au long de l'évolution, ce qui implique que l'on règle l'intensité du faisceau afin de compenser les fluctuations de réactivité d'un cycle à l'autre : ceci est vrai tant dans la réalité que dans les simulations, c'est à dire que les fluctuations statistiques dues à la méthode Monte Carlo utilisée imposent implicitement des variations sur l'intensité du faisceau afin d'obtenir à chaque instant le même nombre total de fissions par unité de temps. D'autre part, le fait de fixer la densité de puissance d'un système à l'autre permet de comparer les différentes filières étudiées de façon pertinente ; en effet, une même densité de puissance fixe le burn-up (pour un temps d'irradiation équivalent), c'est à dire la quantité de combustible brûlée (donc consommée) par rapport à la quantité initiale de combustible placé dans le réacteur. Ceci implique que l'on peut comparer les filières à un instant donné sans avoir à faire de rectifications liées au burn-up qui peuvent être gênantes étant donné les retraitements effectués à des temps fixes.

Traitement particulier de l'évolution de l' ^{242}Am

L' ^{242}Am possède un état excité métastable d'énergie 48.6 KeV et de période 141 ans environ noté ^{242m}Am . La décroissance de l'état métastable produit un noyau d' ^{242}Am dans son état fondamental, qui se désintègre très rapidement (16 heures) en ^{242}Cm (décroissance β^-). Une capture neutronique sur un noyau d' ^{241}Am produit un noyau d' ^{242}Am excité. Le niveau d'excitation est dominé par l'énergie de liaison du neutron supplémentaire qui est de quelques MeV, bien au delà de l'état excité métastable. C'est lors de sa désexcitation que le noyau peut tomber sur l'état excité métastable à 48.6 KeV. L'apport de l'énergie cinétique du neutron incident à

l'énergie d'excitation du noyau est négligeable. La production d' ^{242m}Am est donc peu dépendante de l'énergie incidente du neutron. Des mesures effectuées dans le domaine des énergies thermiques [40] donnent un rapport de branchement de l'ordre de 10% vers l' ^{242m}Am lors d'une capture (n, γ) sur l' ^{241}Am . Des mesures récentes en spectre rapide confirment cette valeur. Nous choisissons donc ce rapport de branchement de 10% pour traiter une capture neutronique sur un noyau d' ^{241}Am :



3.3.4 Couplage du code MCNP à un programme d'évolution

Equations d'évolution

Chaque noyau peut disparaître soit par réaction neutronique, soit par décroissance naturelle, de même, chaque noyau peut être créé soit par réaction neutronique sur un noyau, soit par décroissance naturelle d'un noyau père. Les équations d'évolution d'un noyau donné se limitent à ces quatre termes.

Les réactions neutroniques font apparaître les sections efficaces moyennes σ des noyaux et le flux de neutrons intégrés sur l'énergie ϕ . La dépendance spatiale de ces deux paramètres nécessite de découper le cœur du réacteur en cellules dans lesquelles ils seront calculés. Nous choisissons de définir 100 cellules d'évolution, ce qui correspond, pour un réacteur d'un volume de 3 m³, à un pas en rayon d'environ 6 cm et en hauteur d'environ 5 cm.

L'évolution du noyau i s'écrit sous la forme

$$\frac{dN_i}{dt} = -\sigma_i^{Abs}\phi N_i + \sum_j \sigma_{j \rightarrow i}\phi N_j - \lambda_i N_i + \sum_j \lambda_{j \rightarrow i} N_j \quad (3.15)$$

avec

- N_i est le nombre de noyau i
- σ_i^{Abs} la section efficace moyenne d'absorption du noyau i
- $\sigma_{j \rightarrow i}$ la section efficace moyenne du noyau j de la réaction produisant i
- λ_i est la constante de décroissance totale du noyau i
- $\lambda_{j \rightarrow i}$ la constante de la décroissance partielle du noyau j vers le noyau i

Les deux premiers termes correspondent aux réactions neutroniques, les deux derniers aux décroissances naturelles des noyaux. Globalement on obtient un système d'équations couplées qui peut s'écrire sous forme matricielle :

$$\frac{d\vec{N}(t)}{dt} = A\vec{N}(t) \quad (3.16)$$

où

– $\vec{N}(t)$ est un vecteur contenant le nombre d'atomes de chaque noyau :

$$\vec{N}(t) = \begin{pmatrix} N_1(t) \\ N_2(t) \\ \dots \\ N_j(t) \\ \dots \\ N_{n-1}(t) \\ N_n(t) \end{pmatrix} \quad (3.17)$$

– $A_{ii} = -\sigma_i^{abs}\phi - \lambda_i$: disparition du noyau i

$$- A_{ji} = \begin{bmatrix} \sigma_{j \rightarrow i}\phi & \text{création de i par réaction nucléaire sur j} \\ \lambda_{j \rightarrow i} & \text{création de i par décroissance naturelle de j} \end{bmatrix}$$

Données à extraire de MCNP, normalisation

Le paragraphe précédent montre qu'il est nécessaire de connaître les sections efficaces moyennes des réactions utiles pour chaque noyau concerné par l'évolution, ainsi que la valeur intégrée du flux, et ceci pour chaque cellule. Les grandeurs disponibles à l'issue d'un calcul MCNP sont pour chaque cellule (en notant $\phi_{src}(E)$ le flux différentiel normalisé par neutron source) :

- $\frac{1}{V} \int \phi_{src}(E) dE dV$: flux moyen par neutron source ($n/cm^2/n_{src}$)
- $\frac{1}{V} \int \sigma(E) \phi_{src}(E) dE dV$: taux de réaction par noyau et par neutron source

Les sections efficaces moyennes sont alors données par :

$$\sigma = \frac{\frac{1}{V} \int \sigma(E) \phi_{src}(E) dE dV}{\frac{1}{V} \int \phi_{src}(E) dE dV} \quad (3.18)$$

Le flux intégré est en unité $neutrons/cm^2/n_{src}$ et doit être normalisé par unité de temps, avant d'intervenir dans la matrice d'évolution :

$$\phi = \phi_{src} \times (n_{src}/s) \quad (3.19)$$

où n_{src}/s représente le nombre de neutrons source produits par seconde. Comme on a choisi de fixer la puissance du réacteur, ce nombre de neutrons source produits par seconde est donné par :

$$(n_{src}/s) = \frac{Puissance}{E_{fission}} \frac{1}{(Nb\ fissions/Nsrc)} \quad (3.20)$$

où le nombre de fissions par neutron source est directement tiré de MCNP :

$$Nb\text{fissions}/N\text{src} = \sum_i n_i \sigma_i^{fis} \phi_{src} \quad (3.21)$$

On a maintenant tous les éléments en main pour remplir la matrice d'évolution. Le système linéaire est alors résolu par une méthode de Runge Kutta d'ordre 4, bien adaptée à la durée sur laquelle on veut calculer de l'évolution (de quelques semaines à quelques années).

Algorithme d'évolution

Le couplage de MCNP au programme d'évolution peut se résumer ainsi :

- 1 • initialisation : écriture d'un fichier MCNP à partir des caractéristiques initiales choisies
- 2 • exécution de MCNP
- 3 • Extraction des résultats, calcul des sections efficaces moyennes, et normalisation du flux intégré
- 4 • Intégration du système différentiel d'évolution pour chaque cellule
- 5 • Ecriture d'un nouveau fichier MCNP contenant les nouvelles compositions de matériaux
- 6 • retour à la phase 2

Il apparaît deux types de pas d'intégration, un premier lié à l'intégration du système différentiel, le second lié au temps écoulé entre deux calculs MCNP. Les erreurs générées par ces deux types de discrétisation doivent être étudiées soigneusement, c'est l'objet du paragraphe suivant.

3.4 Etude statistique

3.4.1 Description du problème

Plusieurs types d'erreurs peuvent apparaître dans ce type de couplage entre l'intégration d'un système différentiel, et les calculs successifs d'un code Monte Carlo comportant ses propres erreurs statistiques. Le système différentiel n'est pas linéaire puisque, à chaque pas d'intégration, le flux intégré est recalculé à partir du nouveau nombre de fissions par neutron source. Ce caractère non linéaire nous empêche de faire une étude classique de stabilité basée sur la recherche de la valeur propre de plus grand module de la matrice. Nous sommes donc obligés de tester différents pas d'intégration et de vérifier la convergence du système. Une étude rapide permet de montrer qu'un pas défini comme un cinquième de la plus petite période des noyaux étudiés est largement suffisant pour faire converger l'intégration du système d'équations différentielles.

Quoi qu'il en soit, le temps de calcul global de l'évolution d'un combustible est largement dominé par le temps de calcul du code Monte Carlo, il s'agit donc d'étudier précisément la propagation des erreurs statistiques liées à cette méthode de simulation. Deux paramètres sont à déterminer, le temps de calcul d'une simulation Monte Carlo, et le temps sur lequel l'évolution est calculée avant un nouveau calcul MCNP.

Deux phénomènes entrent en jeu, d'une part l'évolution des sections efficaces dans le réacteur, dues à l'évolution des compositions des matériaux et à la variation de la forme du spectre neutronique que cela induit, d'autre part la propagation des erreurs statistiques des résultats de MCNP. Nous choisissons de fixer le temps d'un calcul MCNP à 15 minutes CPU. Ce faisant on fixe en fait le nombre total de neutrons traités par MCNP, indépendamment du facteur de multiplication k_s du système. On retrouve ainsi les mêmes erreurs statistiques d'un cycle à l'autre et d'une configuration étudiée à une autre, quelque soit la valeur du facteur de multiplication k_s .

A titre d'exemple, 15 minutes de calcul MCNP sur les stations de travail dont nous disposons actuellement (DEC Alpha 500/500) permet de traiter environ 20000 neutrons, ce qui correspond à 400 neutrons source pour un facteur de multiplication typique de 0.98. Une telle statistique implique des erreurs sur les sections efficaces de moins de 10% dans chaque cellule. Cette erreur dépend en fait du corps étudié, et notamment de la présence ou non de fortes résonances à basse énergie, là où la statistique est relativement faible.

Nous étudions maintenant la propagation des erreurs statistiques sur l'évolution du nombre de noyaux de combustible en fonction du temps entre chaque calcul MCNP. Les caractéristiques du premier exemple choisi pour mener cette étude sont représentées dans le tableau 3.2. Il s'agit d'un système utilisant la filière uranium.

Combustible	^{238}U / Pu
Volume du cœur	3.0 m ³
Proportion volumique de plomb	50 %
Proportion volumique de combustible	39 %
Concentration Pu	11 %
Puissance	385 MW

TAB. 3.2 – *Caractéristiques du système choisi pour illustrer la propagation des différentes erreurs lors du couplage de MCNP à un code d'évolution.*

3.4.2 Propagation des erreurs

La figure 3.9 représente l'évolution du ^{239}Pu et du ^{244}Cm dans le réacteur pour des calculs MCNP effectués tous les 3 mois. Comme nous le verrons par la suite, le ^{244}Cm joue un rôle important dans la radiotoxicité générée par la filière uranium, ce qui justifie le fait que nous

choisissons ce noyau pour illustrer cette étude statistique. Ces calculs sont comparés à des évolutions calculées sans simulation Monte Carlo intermédiaire.

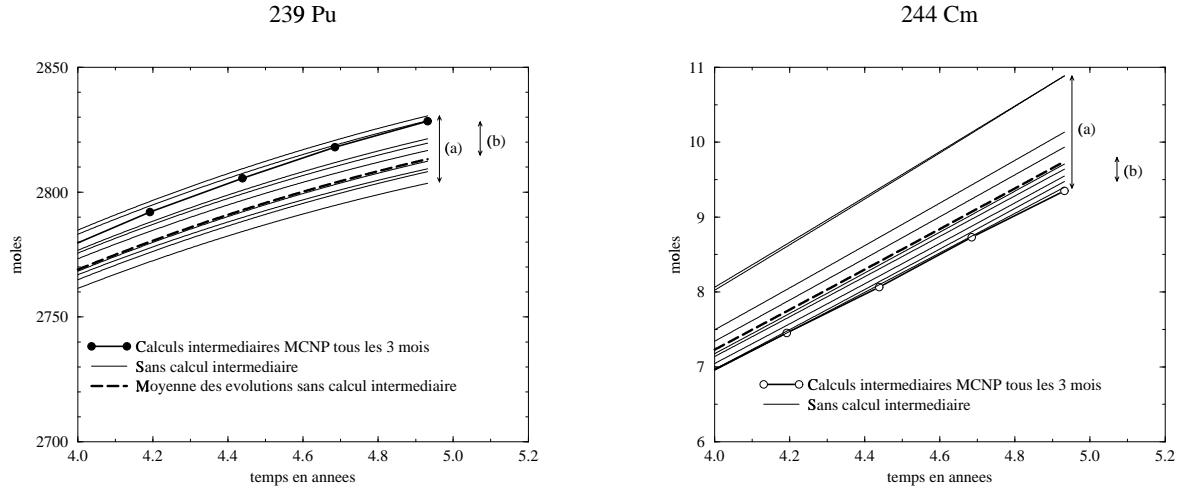


FIG. 3.9 – Comparaison de l'évolution du ^{239}Pu et du ^{244}Cm avec ou sans calcul Monte Carlo intermédiaire; les erreurs de type (a) correspondent à la dispersion des calculs sans simulation Monte Carlo intermédiaire; les erreurs de type (b) correspondent à la différence moyenne observée entre le nombre de noyaux calculé avec ou sans calcul Monte Carlo intermédiaire.

On remarque tout d'abord que l'erreur sur le calcul du nombre de noyaux de ^{239}Pu sans simulation MCNP intermédiaire est inférieure à 1%, ce qui est très faible. Cette erreur passe à 10% sur l'évolution du ^{244}Cm . L'accumulation des fluctuations statistiques propres à la méthode de calcul Monte Carlo sur le calcul des nombreuses sections efficaces moyennes intervenant dans la production du ^{244}Cm à partir des noyaux de plutonium induit une erreur beaucoup plus élevée sur le calcul de l'évolution de ce noyau que dans le cas du ^{239}Pu .

D'autre part, on observe sur les deux graphes de la figure 3.9 l'apparition de deux types d'erreurs notés (a) et (b) sur les graphes. L'erreur de type (a) est liée à la propagation des erreurs statistiques du calcul des sections efficaces moyennes initiales propres à la méthode Monte Carlo. Ces erreurs peuvent être réduites en augmentant le temps du premier calcul MCNP. Ceci conduirait à moyennner les courbes correspondant au calcul sans simulation intermédiaire. On observe alors que même en moyennnant ces courbes, une autre erreur apparaît entre les deux types d'évolution, notée (b) sur la figure. Cette erreur n'est pas due aux fluctuations statistiques de la méthode Monte Carlo, mais à l'évolution des sections efficaces moyennes avec le temps, dont on ne tient pas compte lorsque l'on ne fait pas de calcul MCNP intermédiaire.

Cette variation des sections efficaces moyennes est très faibles dans ce type de système, ce qui explique les faibles erreurs observées au bout de 5 ans d'évolution à partir d'un simple calcul MCNP initial de 15 minutes. La figure 3.10 montre l'évolution de la section efficace moyenne

de fission du ^{239}Pu et la section efficace moyenne de capture (n,γ) de l' ^{238}U . Ces variations s'expliquent principalement par une absorption supplémentaire dans les basses énergies induite par l'apparition des produits de fission, qui conduit à un durcissement du spectre neutronique. Les noyaux fissiles voient donc leurs sections efficaces moyennes de fission et de capture diminuer, en ce qui concerne les noyaux fertiles, seule la section efficace de capture diminue, la section efficace moyenne de fission (réaction à seuil) augmente. Il faut noter que ce type de système, où les noyaux fissiles sont régénérés par les noyaux fertiles, induit de faibles variations de sections efficaces moyennes au cours du temps, et rend le système favorable du point de vue de la propagation des erreurs.

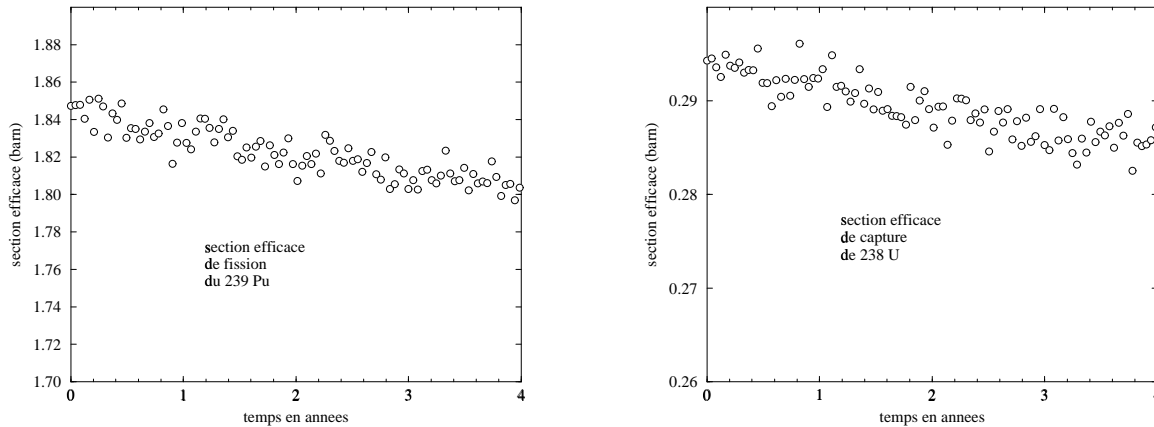


FIG. 3.10 – *Evolution des sections efficaces moyennes de fission du ^{239}Pu et de capture de l' ^{238}U , due à l'apparition de produits de fission dans le cœur.*

Cependant, nous serons amenés à étudier des systèmes différents où divers phénomènes peuvent apparaître et jouer de manière significative sur l'évolution de ces sections efficaces moyennes. Par exemple, dans le système $^{232}\text{Th} / \text{Pu}$, l'effet d'auto-absorption concernant les noyaux de plutonium présents initialement dans le cœur tend à disparaître avec le temps puisque le plutonium est peu à peu remplacé par l' ^{233}U ; inversement, le même effet augmente en ce qui concerne l' ^{233}U . Les sections efficaces moyennes de ces deux noyaux auront donc tendance à varier sensiblement au cours du temps. La méthode mise au point permet de contrôler et de prendre en compte cette variation.

3.4.3 Un cas défavorable

Nous serons amenés lors de notre étude à étudier un incinérateur de combustibles usés contenant du bore sous forme de B_4C . On observe dans ce type de réacteur une forte variation des sections efficaces moyennes de capture ou de fission des différents noyaux de combustible,

du fait de la consommation du ^{10}B qui est responsable d'une forte absorption dans les basses énergies (beaucoup plus importante que celle induite par l'apparition des produits de fission). La figure 3.11 représente l'évolution du ^{239}Pu et du ^{244}Cm sur 5 ans en utilisant ou non des calculs Monte Carlo intermédiaires, l'évolution des sections efficaces de capture (n,γ) et de fission du ^{239}Pu étant représentée sur la figure 3.12.

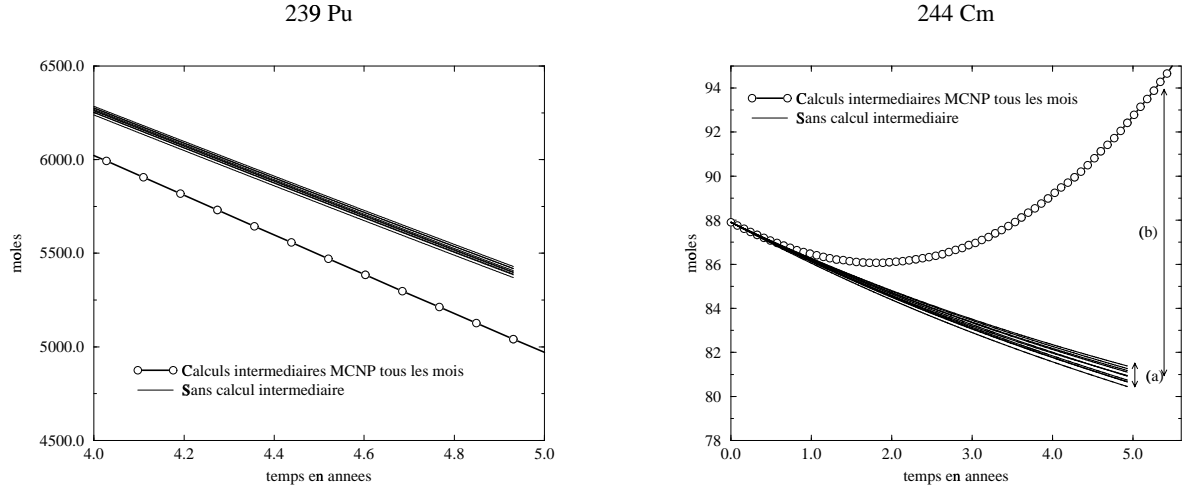


FIG. 3.11 – Evolution du ^{239}Pu et du ^{244}Cm pour un système incinérateur comprenant un quantité importante de bore.

Ce type de système est beaucoup moins favorable concernant la propagation des erreurs statistiques des calculs Monte Carlo que le système décrit précédemment, l'exemple du ^{244}Cm est un cas extrême qui montre que si on ne tient pas compte de l'évolution des sections efficaces moyennes, le comportement du combustible peut être totalement erroné. Tout au long des simulations, nous nous sommes efforcés d'adapter cette méthode de calcul d'évolution des matériaux en fonction des caractéristiques du système, et notamment des variations éventuellement significatives des sections efficaces moyennes, en réglant le temps entre deux calculs MCNP.

Ce couplage entre un code Monte Carlo et un programme d'évolution apparaît donc tout à fait performant pour étudier tout type de système puisqu'il permet de contrôler tout au long de l'évolution tous les paramètres physiques pertinents et d'être adapté à tout type de combustible.

3.4.4 Fluctuations statistiques sur le calcul de k_s

Le temps de calcul choisi pour chaque simulation MCNP permet de traiter environ 20000 neutrons dans le réacteur. Comme le facteur de multiplication k_s est calculé par

$$k_s = \frac{N_{total} - N_{source}}{N_{total}} \quad (3.22)$$

on peut calculer une erreur statistique théorique sur k_s :

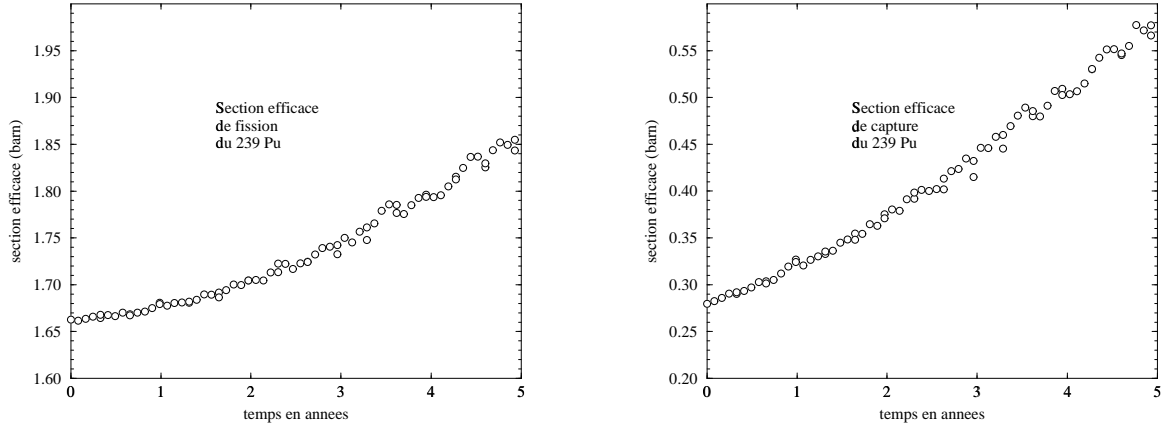


FIG. 3.12 – *Evolution des sections efficaces de fission et de capture du ^{239}Pu due à la disparition progressive du bore dans le cœur.*

$$\frac{dk_s}{k_s} = 2 \frac{dN_{total}}{N_{total}} \approx \frac{2}{\sqrt{N_{total}}} \quad (3.23)$$

L'application numérique donne $\frac{dk_s}{k_s} = 0.015$. Comme le temps de calcul est fixé, cette erreur ne dépend pas du facteur de multiplication k_s lui-même. La figure 3.13 montre les facteurs de multiplication k_s calculés successivement par MCNP lors de l'évolution du réacteur du premier exemple précédent.

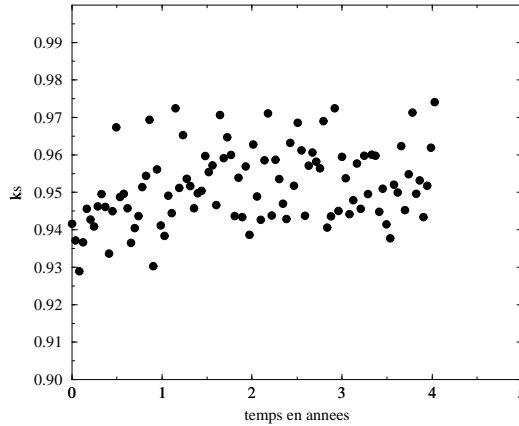


FIG. 3.13 – *Fluctuations statistiques observées sur l'évolution du facteur de multiplication k_s .*

Il faut noter que l'ensemble des calculs MCNP intermédiaires permettent d'obtenir une bonne

précision sur l'évolution moyenne du facteur de multiplication. Il peut paraître surprenant sur les résultats présentés que la convergence soit assurée en ce qui concerne l'évolution des matériaux, alors que les erreurs statistiques sur le calcul du facteur de multiplication k_s semblent relativement élevées pour le temps de calcul que nous avons fixé. Il semble intéressant d'approfondir cette remarque et de bien comprendre les différences qu'il existe entre un calcul de réactivité et un calcul de section efficace moyenne. Des études statistiques détaillées [41] ont montré que le facteur de multiplication est très sensible à un petit nombre d'histoires très longues. Lors d'un calcul MCNP de 15 minutes, peu d'histoires de ce type, qui jouent un grand rôle dans la détermination du facteur de multiplication k_s , sont traitées, ce qui peut induire une erreur statistique importante sur k_s . Cependant, la longueur de l'histoire d'un neutron source n'influence quasiment pas le calcul des sections efficaces moyennes. On peut se référer à l'exemple de MASURCA traité au chapitre 2 qui montre que la source de neutrons de fission est stabilisée en position à partir de trois ou quatre générations seulement. Les erreurs statistiques importantes observées sur le facteur de multiplication ne se répercutent donc pas sur le calcul des sections efficaces moyennes des noyaux de combustible. Ceci permet de calculer précisément l'évolution d'une filière sur plusieurs dizaines d'années avec un temps de calcul raisonnable même si les calculs de k_s possède des fluctuations importantes.

3.5 Calcul de la radiotoxicité d'un stock de noyaux

3.5.1 Facteurs de dose [6]

Comme il a été expliqué dans le premier chapitre, nous avons choisi de représenter la radiotoxicité d'un stock de noyaux par l'engagement de dose efficace dans le cas de l'ingestion de ce stock.

La radiotoxicité est une mesure du risque potentiel auquel serait soumis une personne dans une situation extrême sans aucune mesure de protection. Cette manière de calculer la radiotoxicité n'a pas vraiment d'application pratique, puisqu'elle suppose qu'un individu a ingéré tout le stock de matériau radioactif considéré, cependant, elle permet de comparer entre elles chacune des filières étudiées.

Elle est calculée en tenant compte de tous les paramètres dont dépend la dose efficace : type et énergie des rayonnements émis, forme chimique du produit radioactif et métabolisme. Ces paramètres sont regroupés dans le facteur de dose r_i de chaque noyau. La radiotoxicité d'un stock s'exprime en Sievert (Sv) et s'écrit :

$$R(t) = \sum_i r_i \lambda_i N_i(t) \quad (3.24)$$

Les valeurs des facteurs de dose r_i sont prises dans la publication 68 de la CIPR.

3.5.2 Calcul de l'évolution de la radiotoxicité

L'évolution du nombre de noyau i est régie l'équation 3.15 décrite précédemment. Les temps sur lesquels l'évolution doit être calculée sont maintenant de l'ordre du million d'années, et une description logarithmique est nécessaire. Ces échelles de temps ne permettent pas de résoudre ce système différentiel par une méthode de Runge Kutta, comme précédemment pour le calcul de l'évolution d'un combustible en réacteur, où les périodes étudiées étaient beaucoup plus courtes. Nous avons recours à un programme fourni par J.P. Schapira et développé à l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay, qui résout le système différentiel par diagonalisation de la matrice d'évolution.

$$\frac{d\vec{N}}{dt} = A\vec{N} \quad (3.25)$$

La matrice A est alors diagonalisée : $A = P^{-1}\Delta P$ avec

$$\Delta = \begin{pmatrix} v_1 & & & \\ & v_2 & & \\ & & \dots & \\ & & & \dots \\ & & & & v_n \end{pmatrix} \quad (3.26)$$

P est la matrice de passage de A à Δ et v_i les valeurs propres de la matrice A . Le système différentiel peut maintenant s'écrire

$$\frac{d\vec{N}}{dt} = A\vec{N}(t) = P\Delta P^{-1}\vec{N}(t) \quad (3.27)$$

En posant $\vec{N}(t) = P^{-1}\vec{N}(t)$ on obtient le système

$$\frac{d\vec{N}(t)}{dt} = \Delta\vec{N}(t) \quad (3.28)$$

qui s'intègre immédiatement (puisque la matrice Δ est diagonale):

$$\vec{N}(t) = e^{\Delta \cdot t} \vec{N}^0 \quad (3.29)$$

d'où

$$\vec{N}(t) = P e^{\Delta \cdot t} \vec{N}^0 = P e^{\Delta \cdot t} P^{-1} \vec{N}^0 \quad (3.30)$$

Par la suite, on notera

$$\Gamma(t) = P e^{\Delta \cdot t} P^{-1} \quad (3.31)$$

On obtient alors d'après les relations 3.24, 3.30 et 3.31

$$R(t) = \sum_i \sum_j r_i \lambda_i \Gamma_{ij}(t) N_j^0 \quad (3.32)$$

Cette équation contenant une double sommation sur le nombre de noyaux donne lieu à deux interprétations différentes, chacune correspondant à une description physique très utile. Il faut noter que la somme sur l'indice j correspond à une somme sur les noyaux présents initialement dans le stock dont on étudie l'évolution de radiotoxicité, alors que la somme sur l'indice i s'effectue sur tous les noyaux présents à l'instant t auquel on calcule la radiotoxicité.

3.5.3 Les différentes représentations possibles

Lors de l'évolution de la radiotoxicité, on peut tout d'abord déterminer les contributions de chacun des éléments présents à cet instant de l'évolution. Cette représentation permet par exemple de définir les noyaux pour lesquels des études poussées de confinement et de stockage sont nécessaires. Elle correspond à l'écriture suivante de $R(t)$:

$$R(t) = \sum_i R_i(t) \quad (3.33)$$

avec

$$R_i(t) = r_i \lambda_i N_i(t) = r_i \lambda_i \sum_j \Gamma_{ij}(t) N_j^0 \quad (3.34)$$

$R_i(t)$ représentant alors la radiotoxicité induite par le noyau i présent à l'instant t .

Mais cette représentation ne permet pas de définir quels sont à l'instant initial les noyaux responsables de la radiotoxicité observée à l'instant t ; on doit pour cela utiliser une représentation par noyau père. Cette représentation est directement liée à l'espace propre associé à la matrice A décrit dans le paragraphe précédent.

En effet, si l'on s'intéresse à la radiotoxicité induite par le noyau j présent à $t = 0$, on peut écrire :

$$\vec{N}^0 = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \dots \\ N_j \\ \dots \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.35)$$

Ainsi d'après les relations 3.30 et 3.31

$$N_i(t) = \Gamma_{ij}(t) N_j^0 \quad (3.36)$$

La radiotoxicité engendrée à l'instant t par ce noyau j présent initialement est donc

$$\tilde{R}_j(t) = \sum_i r_i \lambda_i \Gamma_{ij}(t) N_j^0 \quad (3.37)$$

La radiotoxicité induite par un mélange initial de noyaux j s'écrit alors

$$R(t) = \sum_j \tilde{R}_j(t) \quad (3.38)$$

Ces deux manières de décomposer la radiotoxicité totale d'un inventaire de noyaux correspondent aux deux façons d'effectuer la double somme de l'équation 3.32. Nous nous intéresserons principalement dans cette partie à la radiotoxicité “par père” présent dans l'inventaire initial, afin de déterminer quels sont les noyaux produits par chacune des filières et perdus au retraitement responsables de la radiotoxicité la plus importante.

Chapitre 4

Analyse comparative des filières

^{nat}U / Pu et $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$

4.1 Introduction

Lors de la problématique développée au premier chapitre, nous avons vu que deux filières sont envisageables pour poursuivre le nucléaire à long terme ; elles correspondent au deux noyaux fertiles présents dans la nature, le thorium et l'uranium. Une telle utilisation de ces filières nécessite la régénération du matériau fissile par la matrice fertile, ainsi que le multirecyclage du combustible. En ce qui concerne la filière thorium, le noyau fissile principal ^{233}U n'existe pas à l'état naturel ; une phase de transition est donc nécessaire afin d'aboutir à la filière thorium proprement dite. Le schéma de la figure 4.1 résume les différentes possibilités pour aboutir aux filières uranium et thorium à partir des minerais naturels et du plutonium industriel produit par les réacteurs actuels.

Nous étudions dans ce travail s'il est possible d'assurer toutes les étapes de ce schéma, régénération, phases transitoires éventuelles et incinération d'un stock de combustible usé, en utilisant des réacteurs sous-critiques pilotés par accélérateur. Dans un premier temps, nous comparerons en détail les deux filières principales ^{nat}U / Pu et $^{nat}\text{Th}/^{233}\text{U}$, notamment en ce qui concerne la radiotoxicité des actinides perdus au retraitement lors du multirecyclage du combustible. Cette étude permettra de définir et de quantifier les avantages liés à l'utilisation de la filière thorium comparée à la filière uranium, ce qui nous conduira à étudier précisément la façon de converger vers la filière thorium à partir des minerais naturels et des noyaux fissiles dont on dispose actuellement. Tous les combustibles étudiés sont sous forme d'oxydes. Lors du retraitement du combustible, deux types de recyclages sont envisagés et seront détaillés ultérieurement.

Avant d'exposer les résultats concernant l'évolution du combustible et des différents para-

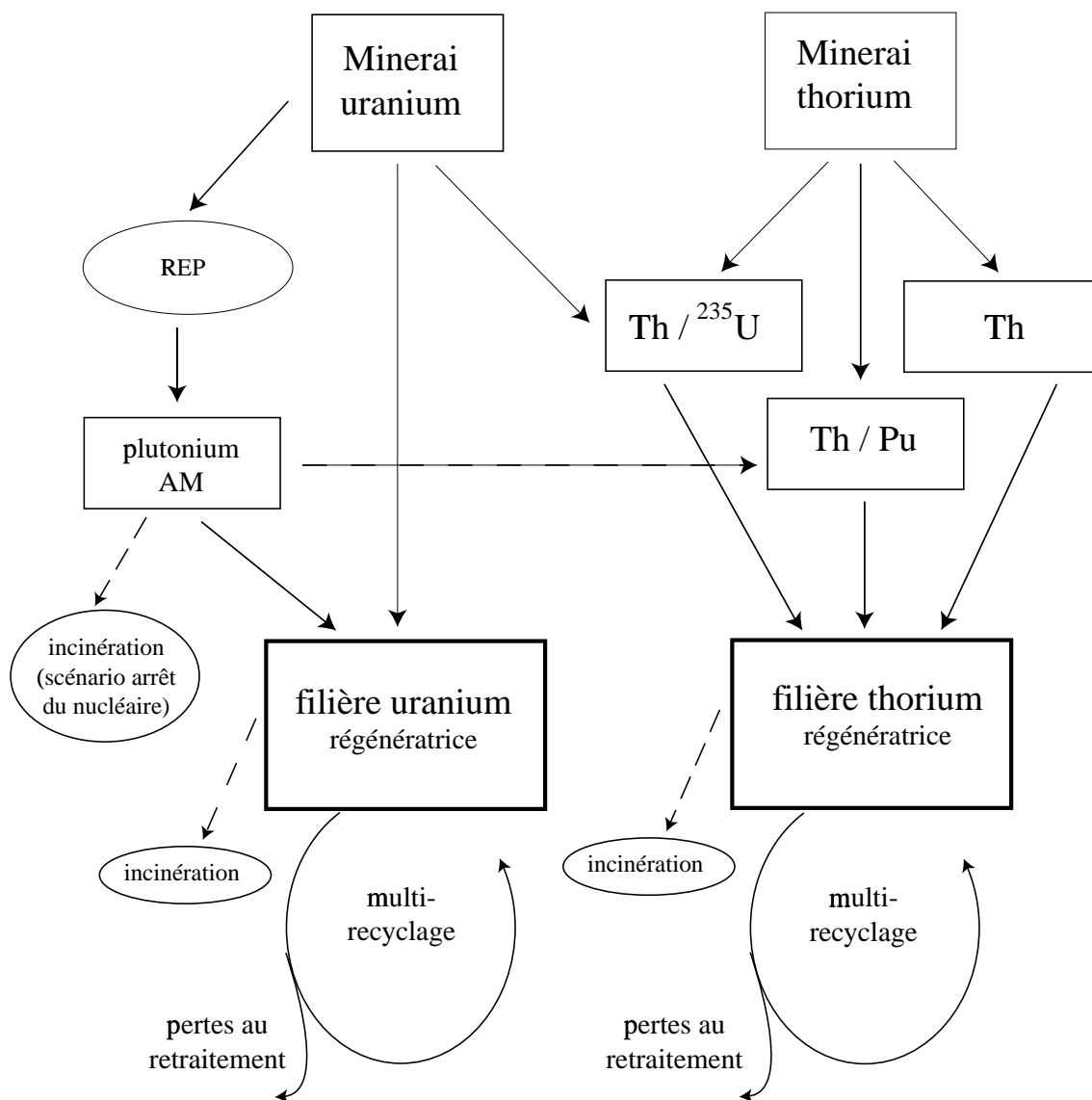


FIG. 4.1 – Schéma des possibilités d'aboutir aux deux filières nucléaires uranium et thorium.

mètres des réacteurs, nous décrivons la façon dont les caractéristiques initiales des réacteurs correspondant à chacune des filières ont été déterminées, et les différents paramètres initiaux de chacun des réacteurs.

4.2 Définition des caractéristiques initiales de réacteurs dédiés à la production d'énergie [7]

4.2.1 Recherche d'un point de fonctionnement

Nous distinguons dans cette partie deux types de réacteurs hybrides : les réacteurs contenant dans leur cœur une matrice fertile susceptible de régénérer en quantité suffisante les noyaux fissiles initialement présents, et les réacteurs ne contenant aucun matériau fertile en quantité importante. Un réacteur dédié à la production d'énergie appartient à la première famille, puisqu'il est sensé produire son propre matériau fissile au cours du temps à partir de captures neutroniques sur les noyaux de la matrice fertile. La seconde famille correspond à des réacteurs dédiés à la destruction d'actinides, pour laquelle il est important qu'il n'y ait pas de noyaux fertiles en grande quantité afin de ne pas produire plus de déchets que l'on ne peut incinérer.

L'évolution du comportement de ces deux types de réacteur est très différente ; l'utilisation de matrice fertile permet de garder une réactivité stable sans intervention extérieure, par régénération adéquate des noyaux fissiles compensant la consommation du combustible initial et l'empoisonnement dû aux produits de fission. Inversement, l'absence de matrice fertile conduit à une chute inévitable de réactivité au cours du temps, que l'on ne peut compenser sans intervention extérieure.

Nous expliquons dans le paragraphe suivant la façon dont se comporte un réacteur dédié à la production d'énergie et les contraintes imposées par cette utilisation. Nous déterminons les caractéristiques initiales des réacteurs correspondant à chaque filière envisagée, ce qui permettra l'étude comparative de différents scénarios.

4.2.2 Points de départ, paramétrisation de k_s initial

Avant d'étudier la façon de maintenir la réactivité, donc le facteur de multiplication k_s , constante, il convient de déterminer k_s initial, et de pouvoir le paramétrer en fonction des variables du réacteur. Rappelons que la proportion volumique de plomb dans le cœur est fixée à 50%, que le rayon et la hauteur du cœur sont déterminés à partir du volume par minimisation des surfaces de fuite, et que l'épaisseur du réflecteur est fixée à 120 cm afin d'utiliser au mieux les neutrons de fuite tout en minimisant la masse de plomb nécessaire. Les deux seuls paramètres libres sont alors le volume du cœur lui-même et la composition du combustible. Ce combustible est composé dans la plupart des cas d'une matrice fertile pure et d'un élément

fissile. La concentration du combustible sera représentée par le rapport du nombre de noyaux du matériau fissile au nombre total de noyaux du combustible. Le terme “fissile” est utilisé de manière un peu abusive, dans le sens où, si l’on prend l’exemple d’un combustible $^{nat}\text{U} / \text{Pu}$, ce que nous appelons concentration en fissile c représente $\frac{n(\text{Pu})}{n(^{nat}\text{U})}$ alors que parmi les isotopes du plutonium, ^{240}Pu et ^{242}Pu sont plutôt des noyaux fertiles. La concentration dont nous parlons est en fait la concentration de l’élément auquel l’isotope proprement fissile (^{239}Pu dans notre exemple) appartient. Inversement, la matrice fertile possède éventuellement des noyaux fissiles en faible quantité (^{235}U dans l’uranium naturel par exemple).

L’étude détaillée de la multiplication durant les premières générations est très délicate à modéliser. On peut essayer de paramétriser l’expression connue de k_s , le but étant de définir son comportement en fonction du volume du cœur V et de la concentration c de fissile définie précédemment. On choisit pour les notations l’exemple d’un système $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$. Par définition, on peut écrire k_s de la façon suivante :

$$k_s = \frac{\int \int [\nu_U n_U \sigma_U^{fis} + \nu_{Th} n_{Th} \sigma_{Th}^{fis}] \phi(E, \vec{r}) dE d^3\vec{r}}{\int \int [n_U \sigma_U^{abs} + n_{Th} \sigma_{Th}^{abs} + \Sigma_0^{abs}] \phi(E, \vec{r}) dE d^3\vec{r} + \int \vec{J} d\vec{S}} \quad (4.1)$$

où Σ_0^{abs} est la section efficace macroscopique d’absorption des éléments de structure et du plomb. En faisant l’approximation :

$$\int \int \nu \sigma(E) n \phi(E, \vec{r}) dE d^3\vec{r} \approx V \phi \nu n \sigma \quad (4.2)$$

le facteur de multiplication peut être écrit comme suit :

$$k_s = \alpha \frac{c + \beta(1 - c)}{c + \gamma(1 - c) + \delta + \varepsilon V^{-1/3}} \quad (4.3)$$

où c est la concentration en fissile par rapport au fertile, dans ce cas $c = \frac{n_U}{n_U + n_{Th}}$. Les coefficients α , β , γ et δ sont des rapports de sections efficaces moyennes :

$$\alpha = \nu_U \frac{\sigma_U^{fis}}{\sigma_U^{abs}} ; \beta = \frac{\nu_{Th} \sigma_{Th}^{fis}}{\nu_U \sigma_U^{fis}} ; \gamma = \frac{\sigma_{Th}^{abs}}{\sigma_U^{abs}} \quad (4.4)$$

$$\delta = \frac{\Sigma_0^{abs}}{(n_U + n_{Th}) \sigma_U^{abs}} \quad (4.5)$$

Notons que le paramètre α est souvent utilisé dans ce domaine sous la notation η ; ε quant à lui est défini par des considérations géométriques :

$$\frac{\int \vec{J} d\vec{S}}{\sigma_U^{abs} (n_U + n_{Th}) \phi V} \approx \varepsilon \frac{V^{2/3}}{V} = \varepsilon V^{-1/3} \quad (4.6)$$

Cette paramétrisation permet d'ajuster les résultats obtenus par les simulations avec une bonne précision. La figure 4.2 montre les résultats des calculs par simulation et de la paramétrisation déterminée pour le cas du système $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$. Le tableau 4.1 montre les valeurs de coefficients α , β , γ , δ et ε obtenus pour les systèmes thorium et uranium.

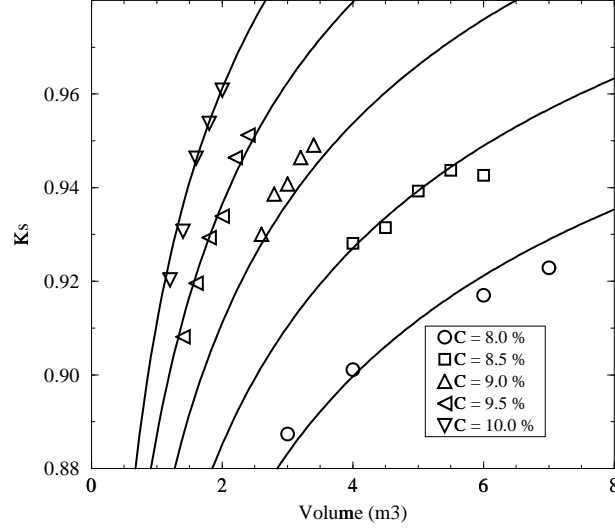


FIG. 4.2 – Paramétrisation du facteur de multiplication k_s à l'aide de l'équation 4.3 pour le système $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$ en fonction du volume du cœur et pour différentes concentrations en ^{233}U .

	$^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$	$^{nat}\text{U} / \text{Pu}$
α	2.7	2.2
β	0.03	0.05
γ	0.1	0.09
δ	0.09	0.07
ε	0.1	0.15

TAB. 4.1 – Paramétrisation du facteur de multiplication initial pour les systèmes $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$ et $^{nat}\text{U} / \text{Pu}$

L'ajustement des paramètres α , β , γ , δ et ε permet de déterminer rapidement les valeurs du volume et de la concentration en fissile nécessaires pour obtenir un facteur de multiplication initial donné. De plus les valeurs obtenues sont compatibles avec l'expression physique de ces paramètres données par les relations 4.4 et 4.5.

4.2.3 Recherche d'une réactivité stable

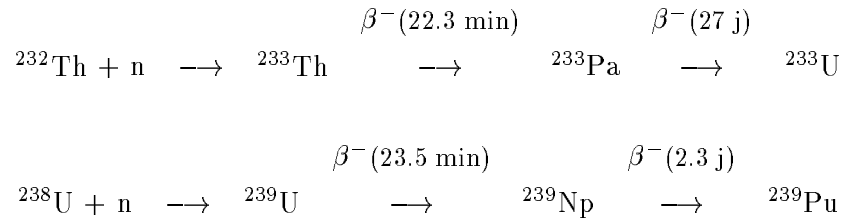
Le maintien de la réactivité par régénération des noyaux fissiles, dans un réacteur dédié à la production d'énergie est très important. On peut ainsi espérer garder une puissance constante du système sans avoir recours à une réserve de réactivité, comme il est d'usage dans les réacteurs critiques de type REP ou RNR. Cette absence de réserve de réactivité assure la sous-criticité intrinsèque du système.

Nous tentons dans un premier temps de faire une liste des paramètres influençant l'évolution du facteur de multiplication et d'étudier par quels moyens il peut être stabilisé.

Les deux paramètres les plus importants dans l'évolution de la réactivité sont le taux de régénération des noyaux fissiles par la matrice fertile et l'empoisonnement dû à l'apparition de produits de fission dans le cœur du réacteur.

Régénération des noyaux fissiles

Dans les deux filières étudiées, les noyaux fissiles sont régénérés par capture neutronique sur les noyaux de la matrice fertile. Dans les deux cas, deux décroissances β intermédiaires interviennent entre le noyau fertile et le noyau fissile :



Dans les calculs de ce paragraphe, nous négligeons les décroissances β intermédiaires et considérons que les noyaux fertiles ne fissionnent pas et que les noyaux fissiles ont une section efficace de capture (n, γ) négligeable. Ces approximations grossières permettent de comprendre qualitativement le phénomène de régénération et la façon dont il intervient dans l'évolution du facteur de multiplication du réacteur.

Dans ces conditions, le système d'équations d'évolution des noyaux fertiles et fissiles s'écrit d'après la relation 3.15 :

$$\begin{aligned}
 \frac{dn_{fertile}}{dt} &= -(n\sigma)_{fertile}\phi \\
 \frac{dn_{fissile}}{dt} &= (n\sigma)_{fertile}\phi - (n\sigma)_{fissile}\phi
 \end{aligned} \tag{4.7}$$

Du fait des approximations faites, les sections efficaces intervenant dans cette équation sont des sections efficaces d'absorption. Si on néglige la disparition de la matrice ($\sigma_{fertile}\phi < 1$), on peut définir un rapport d'équilibre entre les deux noyaux considérés pour lequel $\frac{dn_{fissile}}{dt} = 0$:

$$R_{\acute{e}q} = \left(\frac{n_{fissile}}{n_{fertile}} \right)_{\acute{e}q} = \frac{\sigma_{fertile}}{\sigma_{fissile}} \quad (4.8)$$

La concentration c précédemment utilisée s'écrit alors

$$c_{\acute{e}q} = \frac{R_{\acute{e}q}}{1 + R_{\acute{e}q}} \quad (4.9)$$

Si les conditions initiales correspondent à cette situation d'équilibre, le nombre de noyaux fissiles reste constant dans le réacteur ainsi que le coefficient de multiplication. En effet, compte tenu des approximations faites et de l'équation 4.3, on peut écrire le coefficient de multiplication sous la forme :

$$k_s = \frac{\nu}{1 + \frac{(n\sigma)_{fertile}}{(n\sigma)_{fissile}} + P} \quad (4.10)$$

où P représente le nombre de pertes par absorption dans les éléments de structure et par fuite, normalisé par fission.

Les applications numériques correspondant à cette situation d'équilibre sont $c_{Pu} = 14\%$ pour la filière uranium et $c_U = 11\%$ pour la filière thorium.

On peut se demander comment évolue le combustible lorsque la concentration initiale c_0 est différente de la concentration d'équilibre. On peut écrire 4.7 sous la forme :

$$\frac{dn_{fissile}}{dt} = (n\sigma)_{fissile} \phi \left(\frac{c_{\acute{e}q}}{c_0} \frac{1 - c_0}{1 - c_{\acute{e}q}} - 1 \right) \quad (4.11)$$

Si la concentration initiale c_0 est inférieure à la concentration d'équilibre $c_{\acute{e}q}$, le nombre de noyaux fissiles dans le réacteur augmente, ce qui fera augmenter le facteur de multiplication du système. Inversement, si l'on démarre le réacteur avec un enrichissement en noyaux fissiles plus élevé que la situation d'équilibre, la réactivité aura tendance à chuter.

Effet des produits de fission

Dans les calculs effectués dans le paragraphe précédent, nous avons négligé l'effet des produits de fission. Nous avons vu précédemment que la section efficace moyenne des produits de fission soumis à un flux neutronique constant n'évolue quasiment pas sur l'échelle de temps considérée. Ceci n'exclut pas le fait que les produits de fission créés consomment des neutrons du cœur. Cet effet aura tendance à faire chuter le facteur de multiplication du réacteur.

Etant donné que la puissance du réacteur est fixée, le nombre de produits de fission augmente linéairement avec le temps :

$$N_{PF}(t) = 2Ft \quad (4.12)$$

où F représente le nombre de fissions dans le cœur par unité de temps (F est proportionnel à la puissance du système). Si l'on veut quantifier l'effet des produits de fission sur le facteur de multiplication, il faut modifier la relation 4.10 comme suit

$$k_s = \frac{\nu}{1 + \frac{(n\sigma)_{fertile}}{(n\sigma)_{fissile}} + \frac{Ft}{(n\sigma)_{fissile}} + P} \quad (4.13)$$

On fait toujours l'hypothèse $\frac{n_{fertile}}{n_{fissile}} = cte$, cependant, l'apparition du terme correspondant aux produits de fission ne permet pas de résoudre directement cette équation, cela nécessite une résolution numérique tenant compte du système différentiel 4.7.

La figure 4.3 montre la différence entre les équations 4.10 et 4.13 et permet de quantifier l'effet de l'empoisonnement dû à l'apparition des produits de fission dans le cœur. Les deux valeurs de sections efficaces moyennes correspondant à l' ^{233}U et au ^{239}Pu ont été utilisées, ce qui donne une idée de la différence de l'empoisonnement dû aux produits de fission entre un combustible de la filière thorium et uranium.

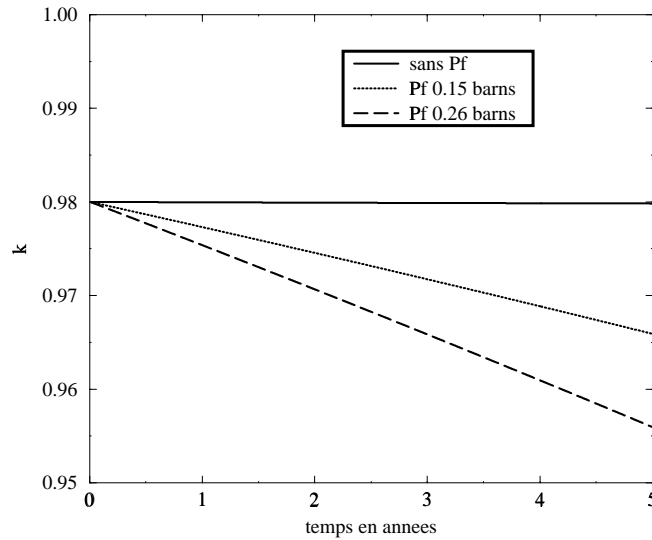


FIG. 4.3 – Effet des produits de fission sur l'évolution du facteur de multiplication paramétrisé selon la relation 4.13. Deux valeurs de sections efficaces moyennes de produits de fission sont utilisées, correspondant aux valeurs déterminées précédemment pour les produits de fission issus de ^{233}U ou du ^{239}Pu .

Pour compenser cet empoisonnement, il faut donc démarrer le réacteur avec une concentration en noyaux fissiles inférieure à la concentration d'équilibre définie précédemment, afin d'augmenter la quantité de noyaux fissiles en même temps que les produits de fission.

Ces considérations permettent de comprendre qualitativement le comportement du facteur de multiplication avec le temps, en fonction de l'enrichissement initial en noyaux fissiles. Toutefois, les approximations effectuées dans les calculs précédents sont trop importantes pour permettre de prédire précisément l'évolution de la réactivité dans le réacteur. Nous n'avons pas pris en compte la disparition des noyaux fertiles, ni les décroissances β intermédiaires entre noyaux fertiles et fissiles, ni les captures neutroniques de noyaux fissiles qui produisent d'autres éléments qui peuvent intervenir dans le comportement du facteur de multiplication. Enfin, l'évolution des sections efficaces moyennes des noyaux et la distribution spatiale du flux, donc de la densité de puissance, n'ont pas été considérées.

Pour toutes ces raisons, il apparaît nécessaire d'effectuer une étude précise par simulation sur une géométrie réaliste qui tient compte de l'ensemble des paramètres, afin de déterminer les conditions initiales permettant d'obtenir une réactivité stable sur la durée de l'étude.

4.2.4 Etude par simulation

Nous présentons, dans ce paragraphe, les résultats de simulations concernant l'évolution du facteur de multiplication k_s . Cette étude a été entreprise dans le cadre de l'étude du maintien de la réactivité dans un réacteur pilote de taille modeste. Compte tenu du fait qu'un réacteur expérimental ne fonctionnera pas à puissance nominale en permanence, une étude de l'évolution sur une durée de deux ans nous a paru un ordre de grandeur raisonnable. Nous examinerons deux types de combustibles : ^{232}Th / ^{233}U et ^{nat}U / Pu .

Le paramètre d'étude est la concentration c en noyaux fissiles. Le volume V du cœur sera déterminé à partir de la valeur de la concentration initiale c_0 choisie et du facteur de multiplication initial k_{s_0} grâce à la paramétrisation décrite précédemment (cf relation 4.3).

La figure 4.4 montre quelques exemples d'évolution de k_s pour différentes configurations. La courte durée de l'étude permet d'effectuer une régression linéaire sur le facteur de multiplication k_s . On observe que lorsque l'on diminue la concentration initiale en noyaux fissiles, $\frac{dk_s}{dt}$ a tendance à croître avec le temps. Ceci permet de définir la concentration d'équilibre. Pour ce faire, nous traçons la variation de la réactivité ($\frac{dk_s}{dt}$) en fonction de la concentration initiale en noyaux fissiles. Les résultats pour les deux types de combustibles sont représentés sur la figure 4.5. Ces courbes permettent de déterminer avec précision les concentrations d'équilibre de chacune des filières permettant d'obtenir une réactivité stable sur 2 ans.

4.2.5 Caractéristiques initiales

Les paragraphes précédents ont montré que les contraintes fixées, à savoir, un facteur de multiplication initial k_{s_0} de l'ordre de 0.98 et une réactivité stable sur plusieurs années de fonctionnement fixent les caractéristiques initiales pour chaque filière envisagée, c'est à dire, le

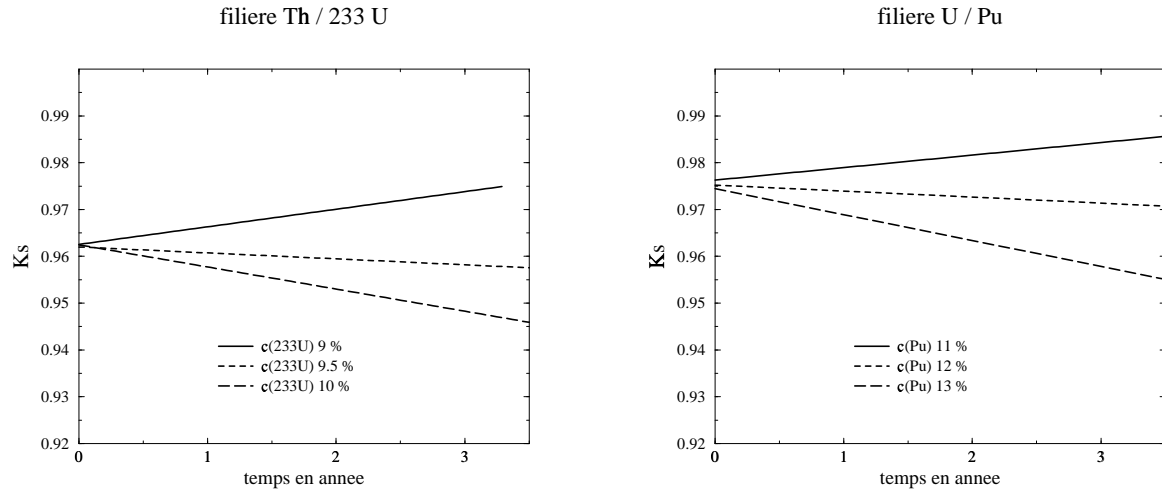


FIG. 4.4 – Exemples d'évolution du facteur de multiplication pour les filière thorium et uranium, pour différentes concentrations en noyaux fissiles (le volume est adapté pour obtenir le bon facteur de multiplication initial).

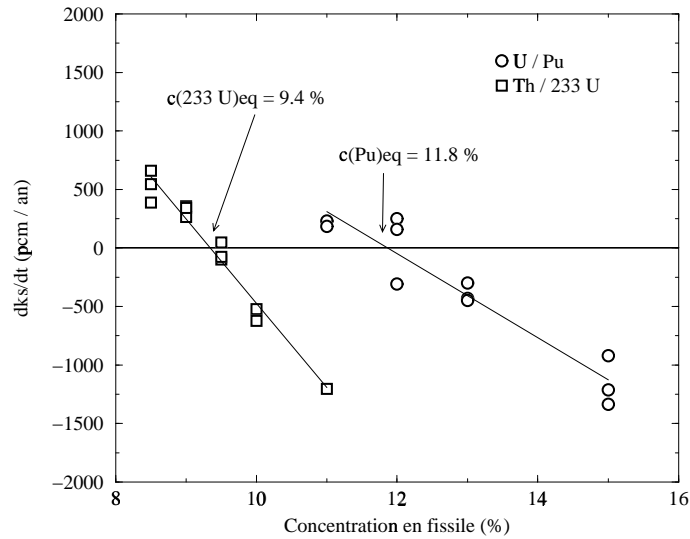


FIG. 4.5 – Variation de la réactivité $\frac{dk_s}{dt}$ en fonction de la concentration en noyaux fissiles pour la filière uranium et thorium.

volume du cœur et la composition du combustible, en particulier le rapport entre le nombre de noyaux fissiles et le nombre de noyaux fertiles. Le tableau 4.2 résume ces caractéristiques pour les deux filières étudiées.

Filière	$^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$	$^{nat}\text{U} / \text{Pu}$
Volume du cœur (m^3)	4.0	2.5
C fissile (%)	9.5	12.0
k_{s_0}	0.98	0.982
k_{eff}	0.974	0.975
Puissance (MW)	515	320
Masse comb (t)	15.6	9.8

TAB. 4.2 – *Caractéristiques initiales des réacteur correspondant à chaque filière définies à partir de $k_s = cte$ et $k_{s_0} \sim 0.98$*

Les résultats correspondent à des réacteurs de taille et de puissance modestes. Nous avons choisi de conserver ces caractéristiques pour mener les évolutions de combustibles sur plusieurs décennies, afin de conserver au mieux une réactivité stable sans intervention extérieure. Cependant, une étude détaillée reste nécessaire afin de déterminer dans quelles conditions la puissance des réacteurs peut être augmentée (concentration de caloporteur, poisons consommables, enrichissement non uniforme, etc...), et les perturbations que cela implique sur les valeurs des sections efficaces moyennes qui régissent l'évolution du combustible.

On peut se demander pendant combien de temps on peut maintenir la réactivité de ces réacteurs constante sans changer le combustible. La figure 4.6 montre le cas de la filière thorium ; on observe que le facteur de multiplication k_s chute à partir de 6 ans environ. Cette chute est due à la disparition de la matrice fertile qui devient alors significative, et qui ne peut régénérer suffisamment de noyaux fissiles pour compenser l'apparition toujours croissante de produits de fission. On identifie aisément sur la figure le lien entre la chute du noyau fissile principal ^{233}U et la décroissance de k_s . Cette courbe indique que le retraitement du combustible est utile tous les 5 ans environ, si l'on veut utiliser ce type de réacteur pour produire de l'énergie. Nous reviendrons sur le recyclage du combustible ultérieurement.

Facteurs de forme

On peut penser que la différence entre les volumes des réacteurs correspondant à chacune des filières induise une différence sensible sur la distribution spatiale des fissions pour chacun des réacteurs, autrement dit, sur la répartition de puissance au sein de la zone multiplicatrice. La figure 4.7 montre que l'effet de volume est relativement faible sur ces facteurs de forme.

On peut observer aussi qu'il existe environ un facteur 3. entre les densités de puissance

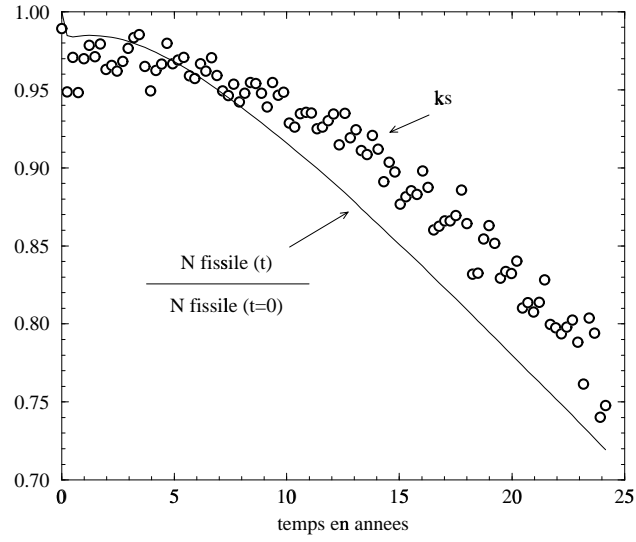


FIG. 4.6 – *Evolution sur 25 ans de la réactivité du réacteur de la filière thorium et du rapport $\frac{N_{233U}(t)}{N_{233U}(t=0)}$.*

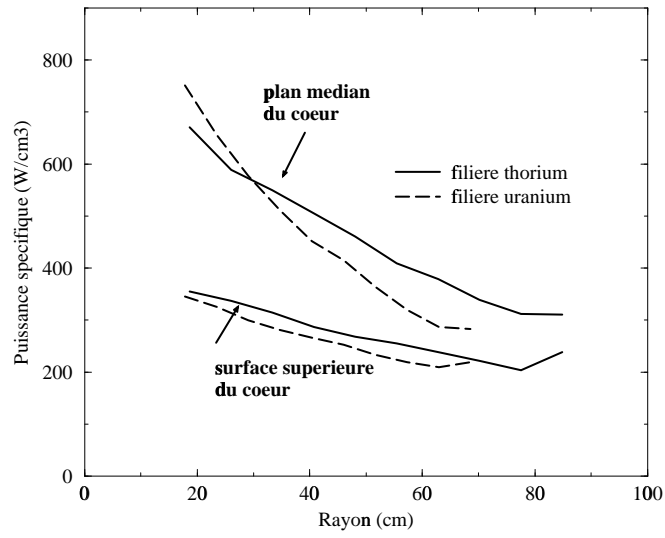


FIG. 4.7 – *Comparaison des facteurs de forme.*

maximale et minimale de ce type de réacteur. On peut envisager de réduire sensiblement cette différence importante, qui induit une hétérogénéité dans l'évolution du combustible, par exemple par un enrichissement en matière fissile dépendant de la position dans le réacteur, ou encore en augmentant la taille de la cible de spallation.

Bilans neutroniques

On présente ici les bilans neutroniques détaillés en début de cycle pour chacune des deux filières étudiées (tableaux 4.3 et 4.4). Ces bilans permettent de décrire assez précisément la vie des neutrons dans le réacteur.

Filière thorium			
	Créations (normalisées par fission)	Disparitions (normalisées par fission)	
Source	0.0457	-	-
Fission	2.51	1.	^{232}Th 1.9% ^{233}U 98.1%
$(n, 2n)$	0.0136	0.0068	^{nat}Pb 49.3% ^{232}Th 55.0% ^{233}U 5.7%
(n, γ)	-	1.4	^{16}O 0.46% ^{nat}Fe 3.73% ^{nat}Pb 11.8% ^{232}Th 77.07% ^{233}U 6.93%
Fuite	-	0.16	-

TAB. 4.3 – *Bilan neutronique détaillé du réacteur de la filière thorium.*

On peut notamment observer la différence entre les deux types de combustibles concernant le nombre moyen de neutrons émis par fission. Dans le cas de la filière thorium ce nombre est d'environ 2.5, alors qu'il est de 2.9 pour un combustible au plutonium. On remarque aussi la part importante des fissions provenant de la matrice fertile dans le cas de la filière uranium ; environ 13% des fissions concernent l' ^{238}U contre seulement 2% pour le ^{232}Th . La différence observée sur la quantité de neutrons de fuite est explicable par la différence de volume des deux réacteurs considérés (cf équation 4.3).

Filière uranium			
	Créations (normalisées par fission)	Disparitions (normalisées par fission)	
Source	0.059	-	-
Fission	2.90	1.	^{235}U 5.51% ^{238}U 13.3% ^{239}Pu 58.6% ^{240}Pu 4.37% ^{241}Pu 17.6% ^{242}Pu 0.65%
$(n, 2n)$	0.014	0.007	^{nat}Pb 53.5% ^{238}U 44.2% ^{tot}Pu 2.3%
(n, γ)	-	1.69	^{16}O 0.35% ^{nat}Fe 3.6% ^{nat}Pb 14.93% ^{235}U 0.94% ^{238}U 63.5% ^{239}Pu 9.86% ^{240}Pu 4.07% ^{241}Pu 1.72% ^{242}Pu 0.88%
Fuites	-	0.27	-

TAB. 4.4 – *Bilan neutronique détaillé du réacteur utilisé de la filière uranium.*

4.3 Description comparative des deux filières principales envisagées pour la production d'énergie : ^{232}Th / ^{233}U et ^{nat}U / Pu

4.3.1 Sections efficaces moyennes

Le tableau 4.5 donne les sections efficaces moyennes de capture (n, γ) et de fission, calculées par MCNP, de tous les noyaux intervenant dans le cycle de chacune des filières, au premier chargement du réacteur. Nous rappelons que l'évolution du combustible est effectuée séparément dans chacune des 100 cellules du réacteurs, tenant compte de la dépendance spatiale de la forme du spectre neutronique et de l'intensité du flux. Les sections efficaces représentées ici sont moyennées sur le volume du cœur. Nous serons amenés tout au long de cette étude comparative à utiliser les données de ce tableau, afin de comprendre dans le détail les différences observées dans les caractéristiques et les comportements des réacteurs de chacune des filières.

filière	^{232}Th / ^{233}U		^{nat}U / Pu		filière	^{232}Th / ^{233}U		^{nat}U / Pu	
	σ^{cap}	σ^{fis}	σ^{cap}	σ^{fis}		σ^{cap}	σ^{fis}	σ^{cap}	σ^{fis}
^{230}Th	0.25	0.026	0.33	0.026	^{241}Am	1.70	0.24	1.89	0.24
^{232}Th	0.32	0.008	0.42	0.008	^{242}Am	0.40	4.00	0.46	4.38
^{231}Pa	3.05	0.23	3.3	0.23	^{243}Am	1.47	0.19	1.75	0.19
^{233}Pa	1.05	0.055	1.25	0.055	^{241}Cm	0.20	3.15	0.22	3.34
^{232}U	0.68	2.16	.74	2.30	^{242}Cm	0.33	0.14	0.39	0.14
^{233}U	0.27	2.73	0.30	2.92	^{243}Cm	0.25	2.68	0.30	3.00
^{234}U	0.61	0.32	0.73	0.32	^{244}Cm	0.94	0.40	0.96	0.40
^{235}U	0.52	1.87	0.58	2.00	^{245}Cm	0.31	2.42	0.35	2.64
^{236}U	0.44	0.089	0.49	0.09	^{246}Cm	0.23	0.24	0.26	0.24
^{238}U	0.34	0.035	0.29	0.035	^{247}Cm	0.33	1.96	0.35	1.95
^{237}Np	1.55	0.30	1.73	0.30	^{248}Cm	0.30	0.28	0.31	0.28
^{239}Np	1.90	0.44	2.12	0.44	^{249}Bk	1.35	0.15	1.60	0.15
^{238}Pu	0.72	1.09	0.82	1.11	^{249}Cf	0.64	2.70	0.67	2.80
^{239}Pu	0.50	1.80	0.55	1.84	^{250}Cf	0.80	1.04	0.96	1.02
^{240}Pu	0.84	0.36	0.59	0.36	^{251}Cf	0.38	2.52	0.42	2.58
^{241}Pu	0.40	2.50	0.44	2.67	^{252}Cf	-	0.65	-	0.70
^{242}Pu	0.59	0.24	0.54	0.24	PF	0.15	-	0.25	-

TAB. 4.5 – Comparaison des sections efficaces moyennes de fission et de capture (n, γ) des noyaux entrant dans le cycle de chacune des filières à l'instant initial.

Une première analyse permet d'expliquer les différences observées entre les sections efficaces moyennes d'un même noyau soumis au spectre correspondant à chacun des réacteurs.

L'effet d'auto-absorption est à l'origine de ces différences, parfois significatives ; une résonance dans la section efficace de capture de fission d'un noyau abondant dans le cœur induit une dépression dans le spectre neutronique aux alentours de l'énergie de cette résonance. Cette même section efficace, une fois moyennée sur le spectre neutronique est affectée par les dépressions qu'elle a elle même provoquées, c'est à dire qu'elle sera différente d'une section efficace moyenne obtenue dans un système où le noyau considéré est très fortement dilué.

Les figures 4.8 et 4.9 mettent en évidence cet effet d'auto-absorption ; elles représentent la forme des spectres observés pour chacune des filières : les dépressions dues à des effets d'auto-absorption de différents noyaux présents dans le cœur y sont visibles. Les structures communes observées sont principalement dues à la présence du plomb dans le cœur du réacteur. Des différences notables apparaissent entre les deux spectres à des énergies inférieures à quelques dizaines d'eV.

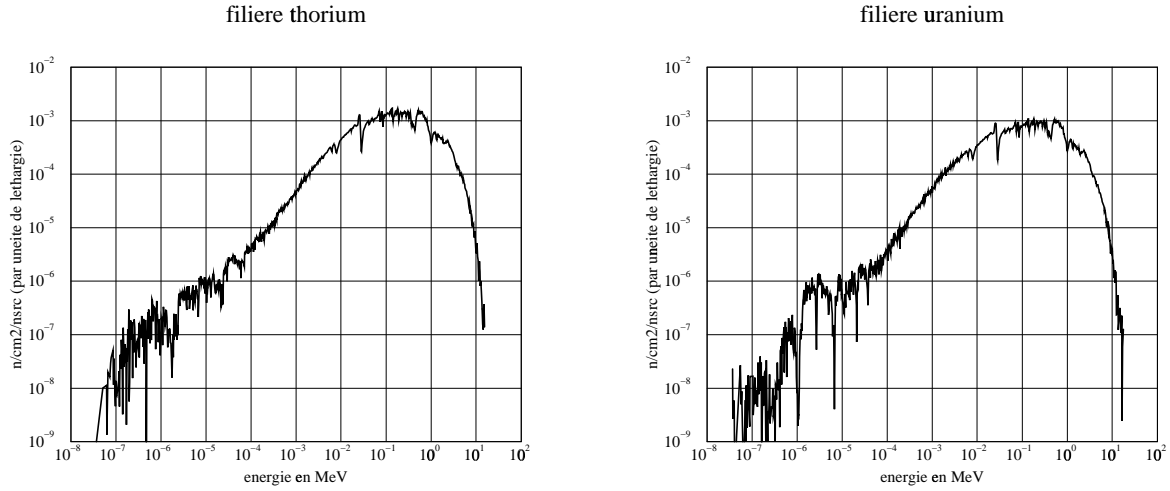


FIG. 4.8 – *Spectres moyens dans les cœurs des réacteurs correspondant au deux filières thorium et uranium.*

Ces différences sont tout à fait visibles sur la figure 4.9 qui représente le rapport entre les spectres observés dans chacun des réacteurs dans la gamme d'énergie [0.01 eV, 10 eV] ; y sont représentées également les sections efficaces différentielles de fission des noyaux fissiles prépondérants de chacune des filières, l' ^{233}U pour la filière thorium et le ^{239}Pu pour la filière uranium. On identifie aisément aux variations de la courbe du rapport des spectres la présence des résonances représentées.

Il est intéressant de tracer le taux de réaction $\sigma(E)\phi(E)$ en fonction de l'énergie pour les noyaux principaux de chacune des filières (figure 4.10), afin de comprendre qu'une partie non négligeable des réactions a lieu dans une gamme d'énergie où le flux différentiel est relativement faible comparé au flux différentiel maximal situé aux alentours de 200 keV. En ce qui concerne

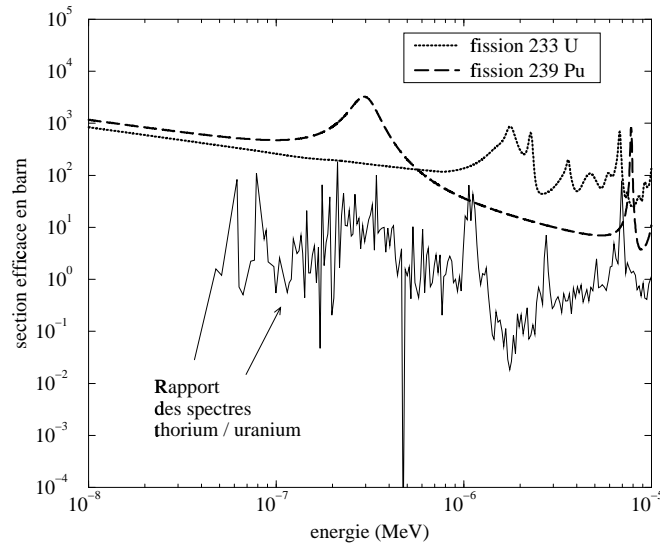


FIG. 4.9 – Représentation du rapport entre les spectres de neutron des filières thorium et uranium. Comparaison avec les sections efficaces différentielles de fission des deux noyaux fissiles prépondérants dans chacun des deux cas.

les captures (n, γ) , la remontée des sections efficaces aux basses énergies tend à compenser la décroissance du flux dans cette zone. Il en est de même des sections efficaces de fission des noyaux fissiles (^{233}U ou ^{239}Pu par exemple). Par contre, pour les noyaux non fissiles (^{232}Th , ^{238}U , ^{240}Pu , ^{242}Pu , etc...), du fait de l'existence d'un seuil dans les sections efficaces de fission (aux alentours du MeV), c'est principalement aux hautes énergies que les fissions se produisent. Les figures 4.10 permettent de quantifier ces considérations qualitatives.

4.3.2 Remarques

L'examen du tableau 4.5 permet de mettre en évidence plusieurs différences notables entre ces deux filières. Nous discutons dans ce paragraphe quelques unes de ces différences, les plus importantes étant développées dans les paragraphes suivants.

- Section efficace moyenne de fission des noyaux fertiles

Dans la filière thorium, le noyau fertile ^{232}Th a une section efficace de fission très faible comparée au noyau fertile de la filière uranium (^{238}U). Ceci peut avoir plusieurs conséquences importantes. Dans le cas d'un réacteur critique, les neutrons retardés apportés par la matrice fertile, qui représente une part significative dans le cas de la filière uranium, deviennent quasiment négligeables dans le cas de la filière thorium ; ceci implique une baisse

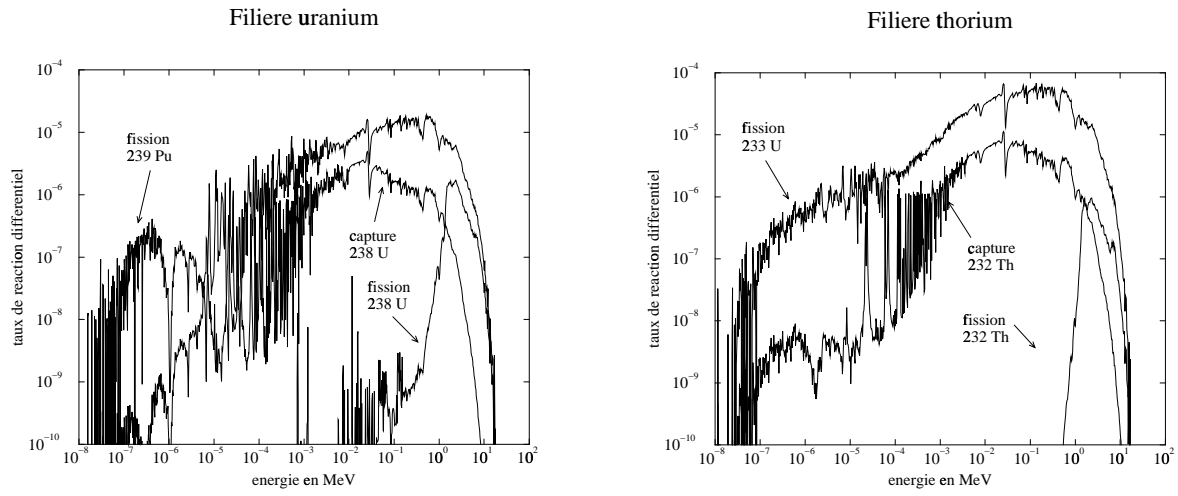


FIG. 4.10 – *Taux de réaction différentiel (par unité de léthargie) de l' ^{238}U et du ^{239}Pu pour la filière uranium, de l' ^{233}U et du ^{232}Th pour la filière thorium*

importante de la proportion globale de neutrons retardés dans le combustible : la valeur de β_r est de 0.46 pour la filière uranium, et passe à 0.29 pour la filière thorium. Cette faible proportion de neutrons retardés peut rendre le pilotage d'un réacteur critique au thorium délicat. La faible section efficace de fission du ^{232}Th permet de penser que la sous-criticité du système rend plus aisée l'utilisation de la filière thorium en réacteur rapide refroidi au plomb.

- Section efficace moyenne de fission des principaux noyaux fissiles

La section efficace de fission de l' ^{233}U est plus importante que celle du ^{239}Pu , cette différence a plusieurs conséquences, notamment sur l'intensité du flux dans le réacteur, comme nous le verrons dans un paragraphe ultérieur.

- Section efficace moyenne de capture (n, γ) des principaux noyaux fissiles

Dans le cas de la filière thorium, le rapport entre section efficace de fission et section efficace d'absorption du noyau fissile principal ^{233}U est de 91%, dans le cas de la filière uranium, ce rapport passe à 77% pour le ^{239}Pu . L'efficacité du noyau fissile principal est donc plus grande dans le cas de la filière thorium, la production de noyaux plus lourds par capture parasite (n, γ) sur le noyau fissile principal étant fortement diminuée.

- Section efficace moyenne de capture des produits de fission

La différence observée a bien entendu un effet significatif sur l'empoisonnement du réacteur par les captures neutroniques sur les produits de fission, qui sont en grande partie responsables de l'évolution de la forme du spectre avec le temps. Les sections efficaces moyennes évolueront davantage dans le cas de la filière uranium. De plus, cette différence

d'absorption par les produits de fission joue un rôle sur le recyclage du combustible, comme nous allons le voir maintenant.

4.3.3 Recyclages

L'étude comparative de différentes filières utilisées dans une nouvelle technologie implique qu'elles soient utilisées pour produire de l'énergie de façon durable. Cela nécessite une utilisation optimale du minerai, que ce soit l'uranium naturel ou le thorium, c'est à dire la régénération du matériau fissile par la matière fertile naturelle. Une telle utilisation nécessite un retraitement périodique du combustible, et ceci pour différentes raisons.

Tout d'abord il est impossible de compenser l'empoisonnement dû aux produits de fission sur des temps très longs (cf figure 4.6) ; en effet, pendant les premières années, la quantité de matrice fertile disparaissant est négligeable devant la masse initiale, mais lorsque ce n'est plus le cas, la matrice fertile ne peut produire suffisamment de noyaux fissiles pour compenser l'apparition de nouveaux produits de fission. Il devient alors nécessaire d'évacuer ces produits de fission accumulés dans le combustible, et de remplacer la matrice fertile consommée.

D'autre part, les éléments de structure soumis à un flux de neutrons se détériorent et nécessitent d'être remplacés régulièrement. Les aciers développés pour les réacteurs à neutrons rapides permettent d'envisager une durée de vie de 5 ans en terme de dégâts neutroniques. Les problèmes liés à la corrosion du plomb par exemple doivent être précisés. Etant donné qu'il est possible de maintenir une réactivité constante sur cet intervalle de temps, nous choisissons d'effectuer un recyclage du combustible tous les 5 ans ; ce qui correspond à un burn-up d'environ 60 GWj/t.

Le premier recyclage étudié consiste à remplacer les produits de fission du cœur par la même masse de matrice fertile, le nouveau combustible étant alors homogénéisé. Tous les actinides sont recyclés ; vont aux déchets les produits de fission, 0.1 % de l'uranium et du plutonium et 1 % des autres actinides. Ce type de recyclage permet de minimiser les déchets à chaque retraitement, puisque la grande majorité des noyaux sont conservés dans le combustible. Ce retraitement nécessite un procédé de séparation différent de celui utilisé actuellement dans les usines de retraitement mais reste cependant envisageable à moyen terme [42]. Cette étude permet de déterminer les radiotoxicités des rejets et de comparer chacune des filières dans un scénario optimisé.

Un autre type de retraitement du combustible a été étudié et consiste à ne recycler que l'élément fissile principal (uranium dans la filière Th / U et plutonium dans la filière U / Pu) ; vont aux déchets les produits de fission, 0.1 % de l'élément fissile principal et la totalité des autres actinides. Ce type de recyclage correspond aux capacités actuelles de séparation et permet d'évaluer les radiotoxicités des filières si elles étaient utilisées très rapidement, sans développement de nouveaux procédés chimiques de séparation. Les deux types de recyclage sont schématisés sur

la figure 4.11.

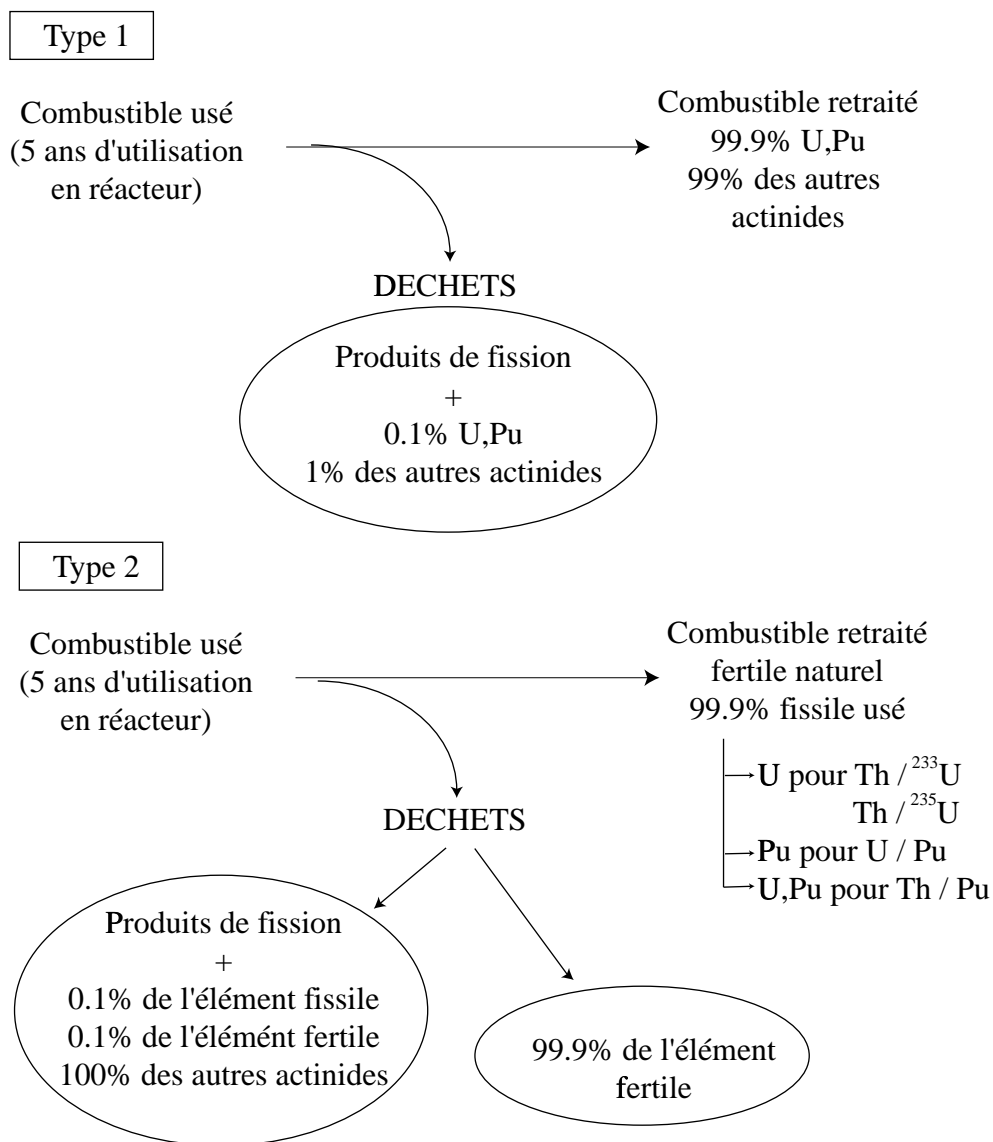


FIG. 4.11 – Les différents types de recyclage envisagés.

Il est à noter que les recyclages envisagés n'influencent quasiment pas sur le comportement du réacteur, notamment le facteur de multiplication, puisque les noyaux concernés ne représentent pas une quantité prépondérante dans le réacteur. Par contre, les rejets à chaque retraitement sont fortement dépendants du type de recyclage utilisé.

La description du comportement du réacteur (évolution du combustible, du flux, etc...) sera effectuée sur les filières utilisant le premier type de recyclage envisagé. Nous présenterons une étude comparative des deux types de recyclage lors de la description de la radiotoxicité induite par chacune des filières envisagées.

Le recyclage conduit à une variation de réactivité entre la fin d'un cycle et le début du suivant. Les deux filières étudiées ont un comportement différent vis à vis de cette évolution de réactivité entre deux cycles. On observe que dans le cas de la filière thorium, le remplacement des produits de fission par la même masse de thorium ne change quasiment pas l'absorption totale du combustible, puisque la section efficace moyenne d'absorption (principalement la capture (n, γ)) du thorium est deux fois plus importante que la section efficace moyenne de capture des produits de fission (cf tableau 4.5). Dans le cas de la filière uranium, le rapport entre les sections efficaces moyennes d'absorption de l'uranium naturel et des produits de fission est inférieur à 2, ce qui laisse présager une augmentation de réactivité entre deux cycles de 5 ans dans le cas de cette filière.

Dans la réalité industrielle, de nombreux paramètres sont à notre disposition pour gérer cette augmentation de réactivité lors d'un retraitement, comme le volume du cœur par exemple. Nous choisissons pour effectuer nos simulations de ne pas changer les caractéristiques du réacteur tant que le facteur de multiplication k_s reste dans un intervalle raisonnable ([0.95,0.98]). En effet la puissance du réacteur étant fixée, l'évolution de cette réactivité n'influence pas l'évolution des matériaux, qui est le résultat que l'on veut étudier. Cependant, afin de mener une évolution sur plusieurs décennies, nous serons amenés à réduire le volume du cœur pour compenser cette augmentation de réactivité, ce qui consiste à retirer quelques barreaux de la périphérie du réacteur. Ces manipulations ne nécessitent pas de modification importante de la configuration du cœur. Nous n'effectuerons cette opération que lorsqu'elle sera strictement nécessaire, afin de conserver le plus longtemps possible les conditions initiales précédemment déterminées qui ont l'avantage de permettre une comparaison sérieuse des deux filières étudiées. Notons que les variations de volume envisagées ne dépassent pas 15 % sur un siècle d'utilisation, et ne viennent quasiment pas perturber les conditions initiales précédemment déterminées.

Nous pouvons vérifier que les sections efficaces moyennes ne dépendent pas du facteur de multiplication k_s dans la zone considérée ([0.95,0.98]) : la figure 4.12 montre le comportement des sections efficaces moyennes de capture de l' ^{238}U et de fission du ^{239}Pu dans un réacteur de la filière ^{nat}U / Pu en fonction du facteur de multiplication k_s (les différents facteurs de multiplication étant obtenus en faisant varier le volume du cœur) et permet de vérifier cette hypothèse.

4.3.4 Evolution des caractéristiques principales du réacteur

Réactivité

La figure 4.13 montre l'évolution du facteur de multiplication k_s dans les deux filières étudiées. Le facteur k_s est moyenné sur chaque cycle durant lequel 20 calculs sont effectués.

Les variations observées pour la filière uranium sont dues aux réajustements périodiques du

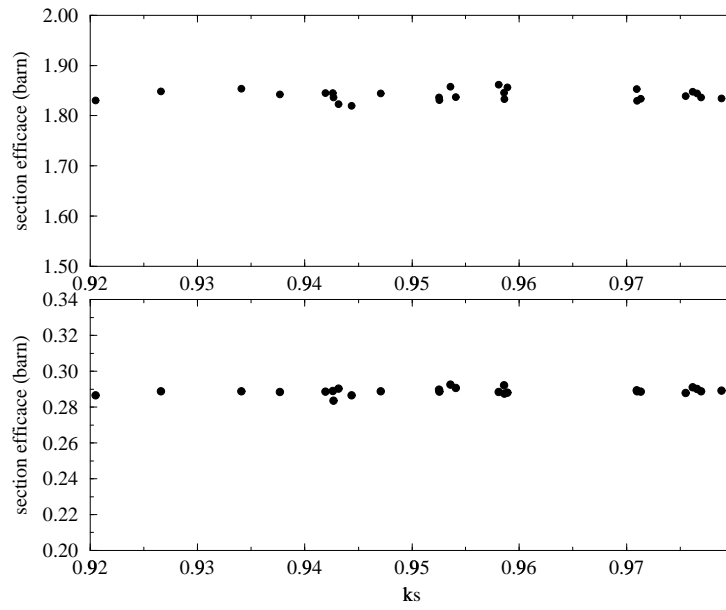


FIG. 4.12 – Comportement des sections efficaces de fission du ^{239}Pu et de ^{238}U dans la filière $^{nat}\text{U} / \text{Pu}$ en fonction du facteur de multiplication k_s .

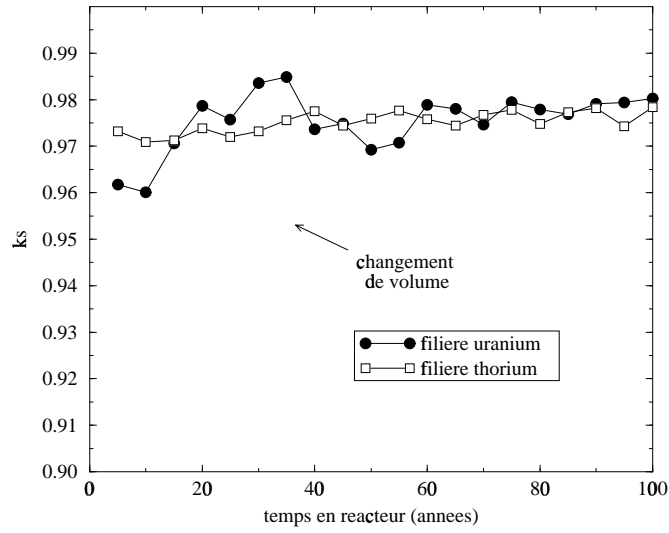


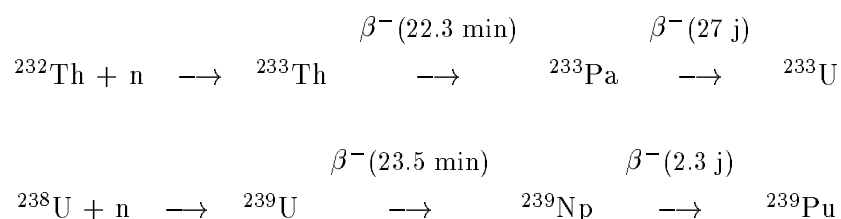
FIG. 4.13 – Evolution de la réactivité avec le temps pour les filières uranium et thorium.

volume visant à compenser l'augmentation de réactivité à chaque recyclage expliquée précédemment.

Matériaux

Nous détaillons ici l'évolution de quelques uns des matériaux les plus importants de chaque filière, en représentant leur évolution lors du fonctionnement du réacteur puis lors du refroidissement. Les quantités sont représentées en moles et normalisées à la puissance du réacteur afin de pouvoir comparer les deux filières. Les figures 4.14 et 4.15 montrent l'évolution des matériaux importants pour le comportement de la réactivité du réacteur, c'est à dire les noyaux fissiles et fertiles les plus abondants dans chaque filière.

Ces figures permettent de visualiser la régénération des matériaux fissiles prépondérants; on observe un comportement relativement différent entre les deux filières lors du démarrage et de l'arrêt du réacteur. Dans les deux filières, le noyau fertile régénère le noyau fissile via deux décroissances β :



La période de décroissance du ${}^{233}\text{Pa}$ induit une absence de régénération en ${}^{233}\text{U}$ pendant les premières semaines de fonctionnement d'un réacteur au thorium. Inversement, lors de l'arrêt du réacteur, le stock de ${}^{233}\text{Pa}$ décroît et provoque une augmentation du nombre de noyaux d' ${}^{233}\text{U}$ durant les quelques semaines suivant l'arrêt du système. Cet effet doit être pris en compte lors de l'évaluation de sûreté du réacteur et l'augmentation de réactivité doit être quantifiée. L'étude précise du comportement du réacteur lors d'un arrêt concerne précisément les études de systèmes, c'est pourquoi nous ne mènerons pas une étude détaillée de cet effet et de la façon dont il doit être géré. Ces deux effets sont invisibles dans la filière uranium, du fait de la plus courte durée de vie du ${}^{239}\text{Np}$. Une autre remarque concerne la rapide décroissance du nombre de noyaux de ${}^{241}\text{Pu}$ lors du premier cycle en réacteur. La régénération de ce noyau par capture (n, γ) sur les noyaux de ${}^{240}\text{Pu}$ ne vient compenser sa disparition qu'à partir du deuxième cycle. Le déséquilibre initial observé entre le ${}^{240}\text{Pu}$ et le ${}^{241}\text{Pu}$ provient du fait que le mélange isotopique du plutonium initial est issu d'un réacteur thermique, dans lequel les rapports entre les sections efficaces d'absorption de ces deux noyaux, et donc les proportions d'équilibre, ne sont pas les mêmes.

Nous traçons maintenant la quantité de chaque noyau au déchargement de chaque cycle. On perd ainsi la visualisation de la structure de l'évolution de chaque noyau, mais cela permet de

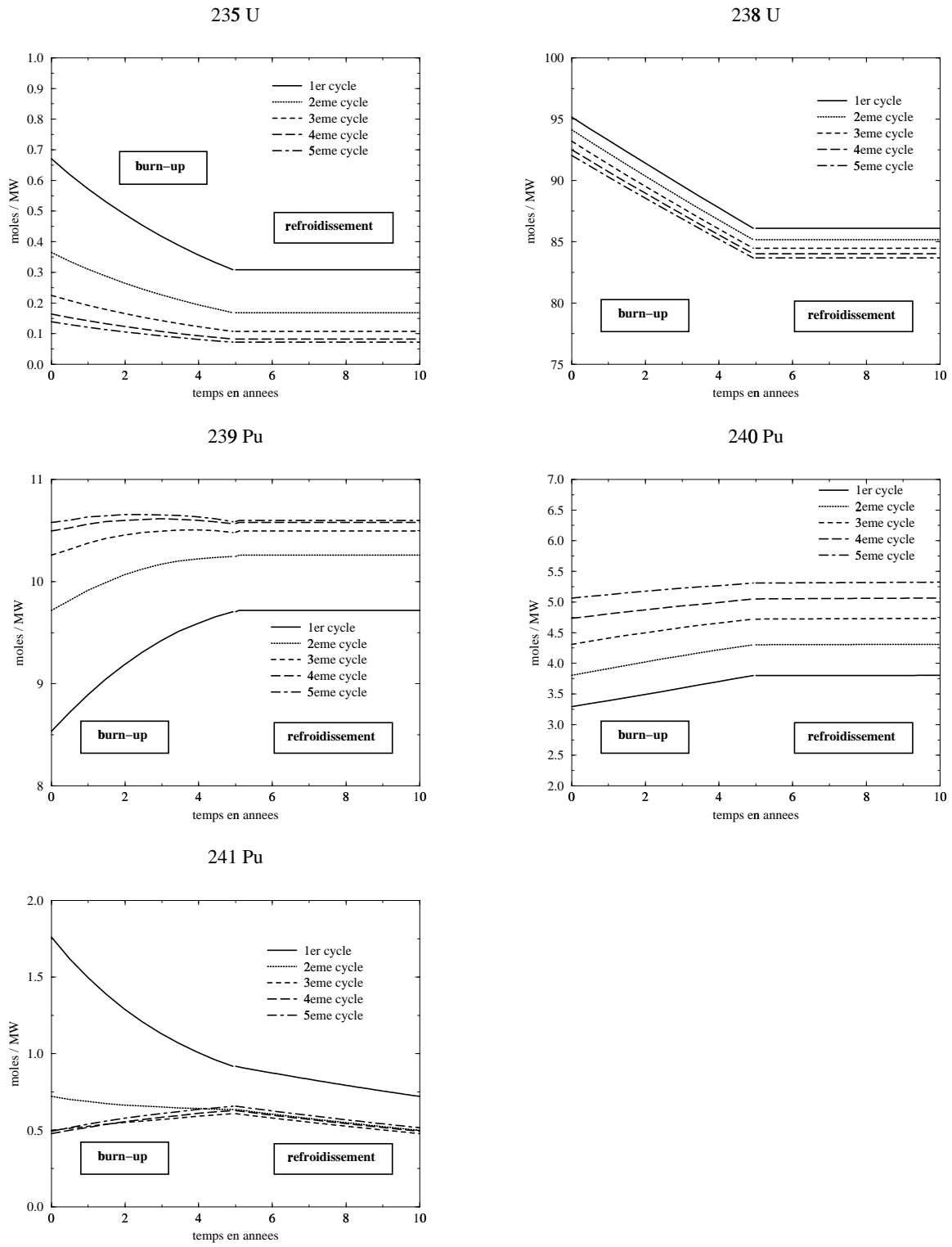


FIG. 4.14 – Evolution des noyaux les plus abondants dans la filière $^{nat}U / Pu$ lors du fonctionnement du réacteur et du refroidissement du combustible.

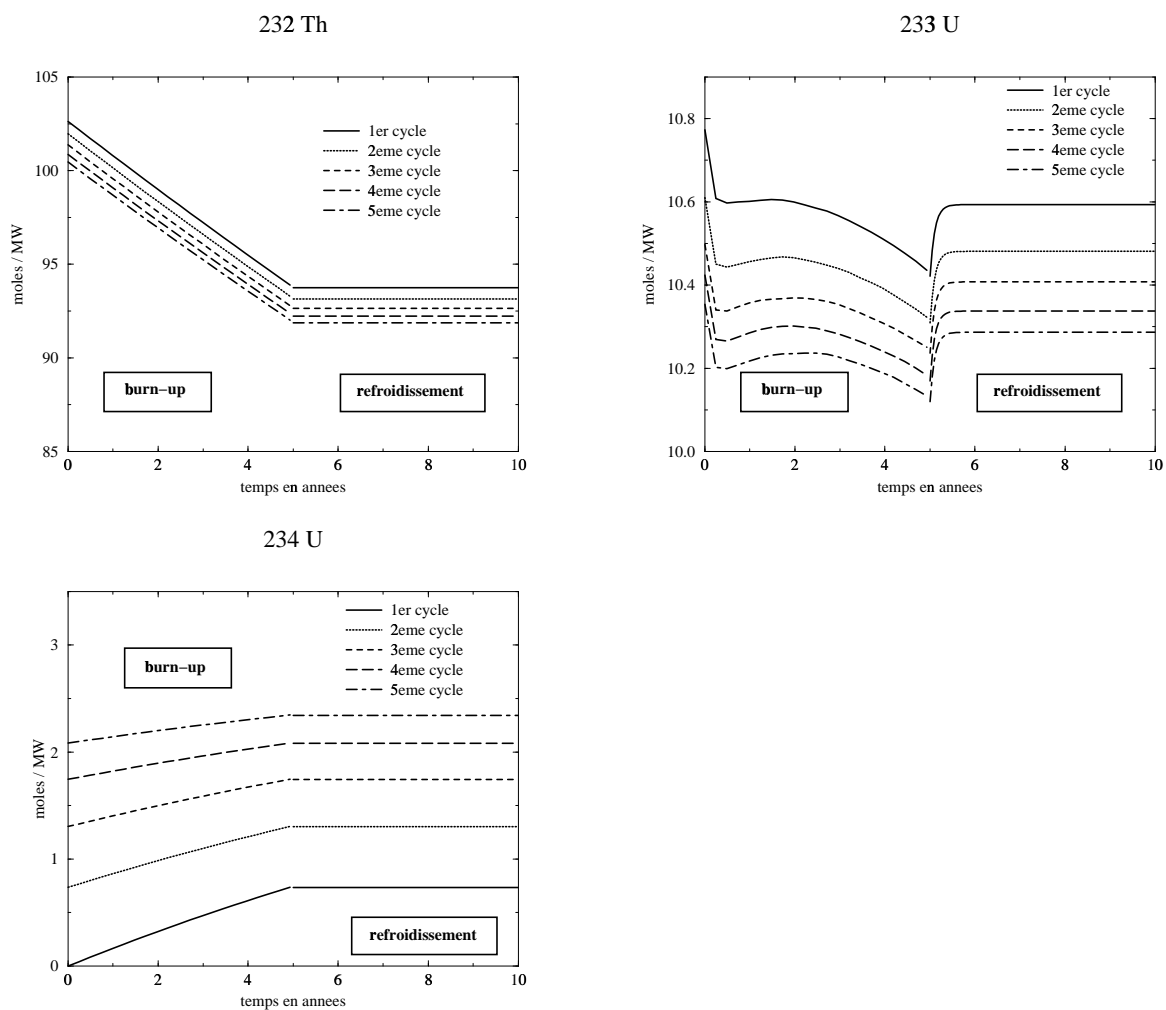


FIG. 4.15 – Evolution des noyaux les plus abondants dans la filière $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$ lors du fonctionnement du réacteur et du refroidissement du combustible.

comparer simplement l'évolution des stocks d'une filière à l'autre sur un siècle d'utilisation en réacteur (figures 4.16, 4.17 et 4.18). Nous choisissons de représenter l'évolution du ^{233}Pa et du ^{239}Np , noyaux à courte durée de vie, qui jouent un rôle dans le comportement du réacteur, puisqu'ils sont les intermédiaires entre le noyau fertile et le noyau fissile de chacune des filières. Ces noyaux ne sont plus présents dans le combustible lors du démarrage du cycle suivant.

Ces figures permettent de comparer d'une part les stocks de chacun des noyaux étudiés, d'autre part leur évolution dans chacune des filières. On peut ainsi remarquer que d'une façon générale, les noyaux de la filière thorium mettent plus de temps à saturer que dans la filière uranium. Ceci provient de l'utilisation d'un mélange isotopique de plutonium dans la filière uranium, et également des délais induits par les nombreuses captures nécessaires pour produire des éléments lourds (Am, Cm, etc...) à partir de l' ^{233}U et du ^{232}Th , seuls noyaux présents initialement dans la filière thorium. Elles permettent d'autre part de quantifier la différence de production d'actinides mineurs lourds (Am, Cm, etc...) entre les deux filières. La différence de six nucléons entre le thorium et l'uranium induit une différence de quatre ordres de grandeur environ sur la production d'actinides mineurs les plus lourds (Am, Cm, etc...), qui sont responsables de la plus forte radiotoxicité de la filière uranium.

Même si la plupart des noyaux lourds ne saturent pas au bout de 100 ans d'utilisation de la filière thorium, on peut par extrapolation observer que le niveau de saturation des noyaux d'américium et de curium est significativement inférieur au niveau atteint dans la filière uranium.

Valeur des flux neutroniques

Une différence notable entre les deux filières vient du fait que les sections efficaces totales de fission sont très différentes. D'après le tableau 4.5, l' ^{233}U fissionne beaucoup plus que le ^{239}Pu qui est le noyau fissile prépondérant dans la filière $^{nat}\text{U} / \text{Pu}$, ce qui explique la différence observée sur les valeurs de flux neutroniques intégrés ; comme la puissance spécifique est la même d'une filière à l'autre, le produit $n_{fissile} \sigma^{fis} \phi$ (qui représente en fait le nombre de fissions par unité de volume et de temps) est le même dans les deux filières. Ainsi, le flux du réacteur de la filière $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$ sera plus faible que celui du réacteur fonctionnant avec la filière $^{nat}\text{U} / \text{Pu}$. La figure 4.19 montre l'évolution de ces deux flux en fonction du temps de fonctionnement du réacteur.

Cette différence de flux doit peut jouer un rôle en ce qui concerne la résistance des matériaux de structure soumis à une irradiation en réacteur. Un flux plus faible est favorable puisqu'il induira moins de dégâts dans ces matériaux. Cette intensité de flux peut aussi jouer un rôle concernant une éventuelle cible au plomb bismuth où les captures sur le bismuth sont très gênantes puisque productrices d'un déchet hautement radiotoxique (^{210}Po) [43, 30], dans ce cas encore, un flux plus faible est favorable. Par contre si on considère le pouvoir transmutateur d'un réacteur hybride, on cherche à avoir un flux relativement élevé dans la couverture en plomb du

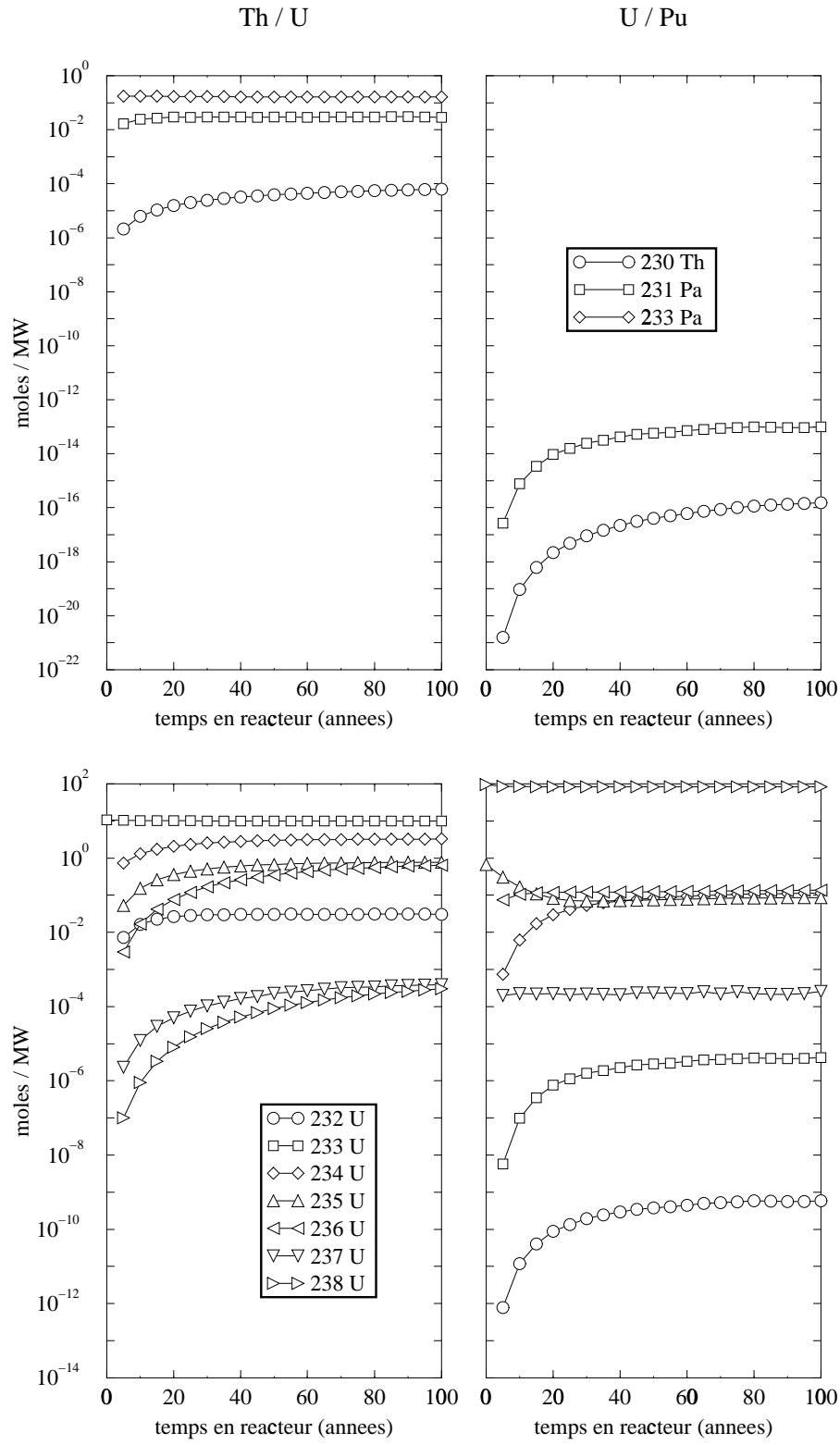


FIG. 4.16 – Comparaison de l'évolution du stock au déchargement, des différents isotopes du thorium, protactinium et uranium dans les deux filières étudiées.

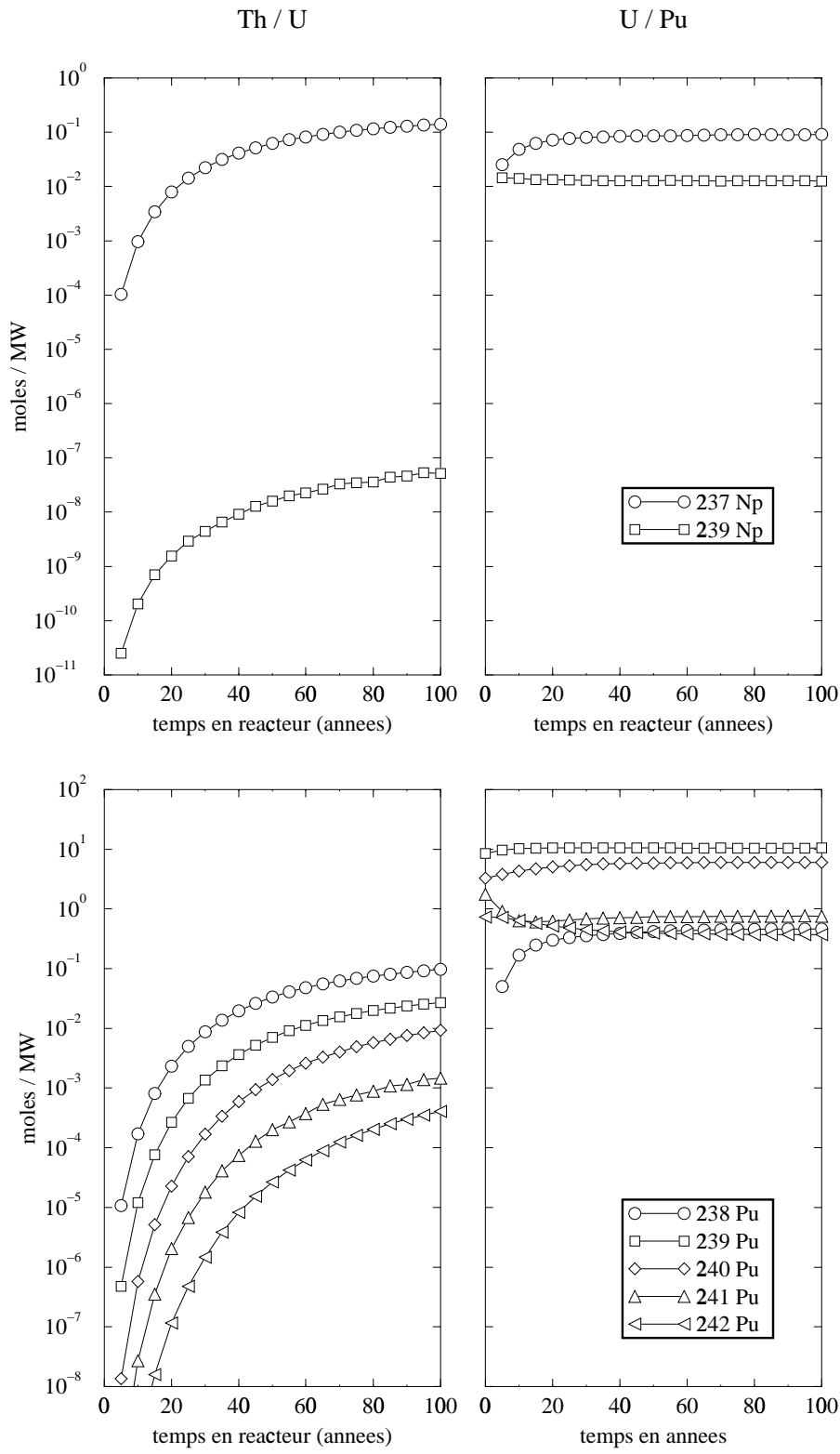


FIG. 4.17 – Comparaison de l'évolution du stock au déchargement, des différents isotopes du neptunium et du plutonium dans les deux filières étudiées.

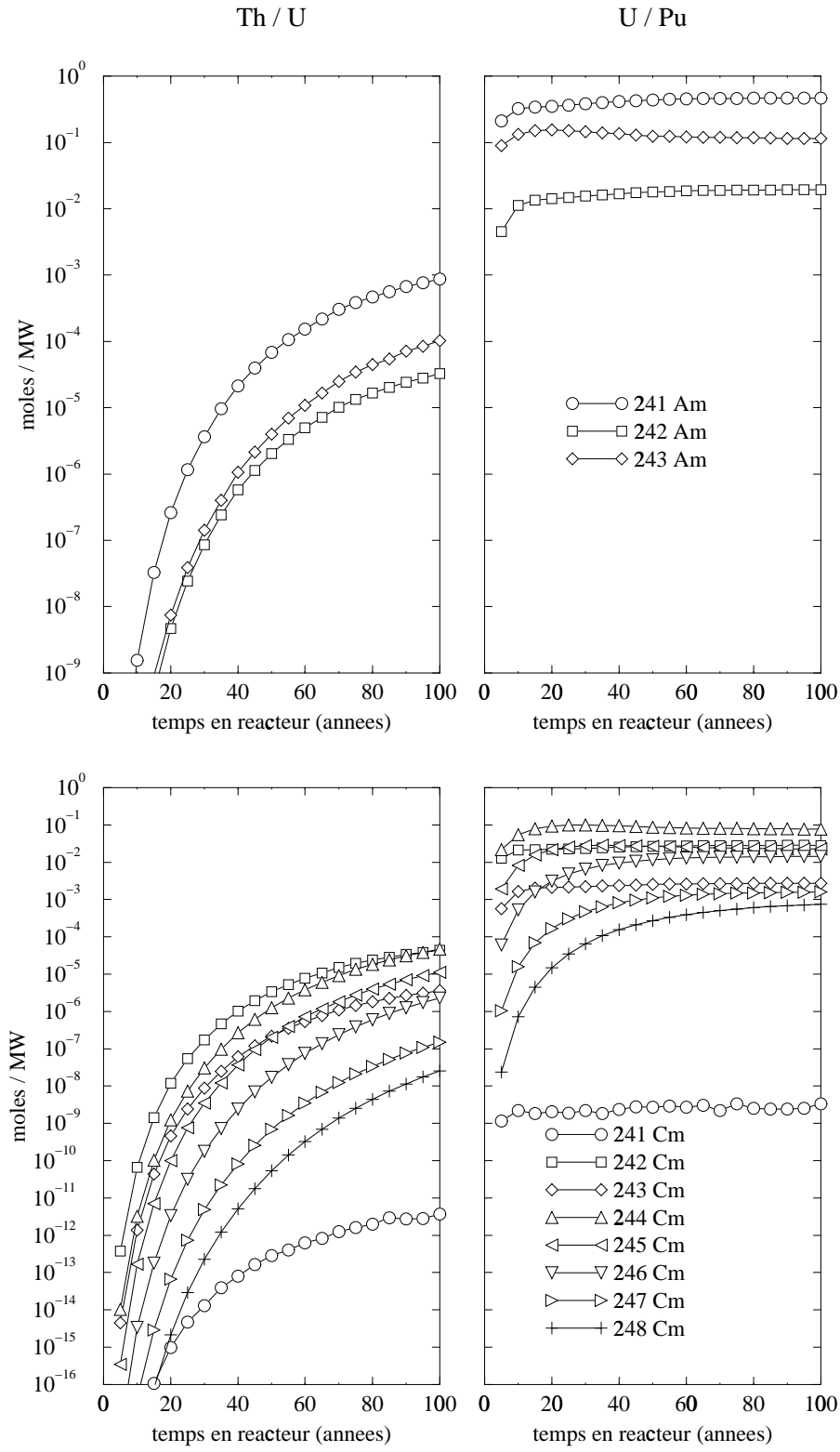


FIG. 4.18 – Comparaison de l'évolution du stock au déchargement, des différents isotopes d'américium et de curium dans les deux filières étudiées.

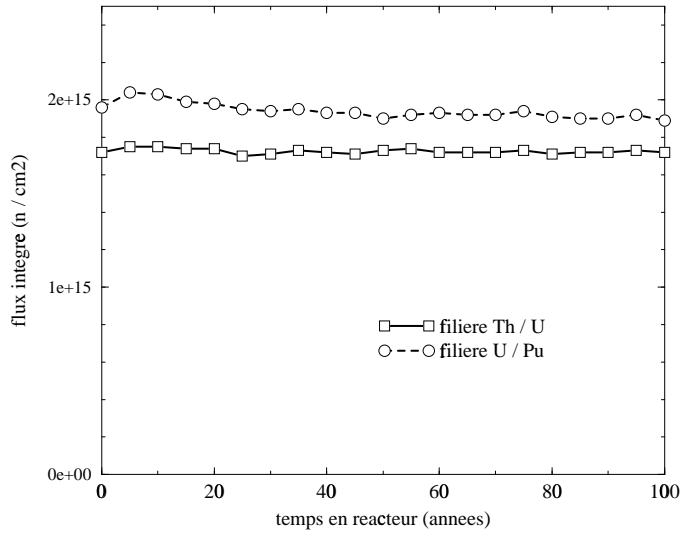


FIG. 4.19 – *Evolution du flux neutronique dans les réacteurs utilisant les filières uranium et thorium.*

réacteur, le système ^{nat}U / Pu semble alors favorable de ce côté pour optimiser la transmutation des produits de fission à vie longue.

4.4 Comparaison des radiotoxicités induites

4.4.1 Recyclage type 1

Nous présentons dans ce paragraphe les radiotoxicités des actinides perdus lors d'un retraitement du combustible de type 1 (cf figure 4.11). La figure 4.20 représente la radiotoxicité des actinides perdus au 5^{ème} et au 20^{ème} retraitement pour les deux filières envisagées.

Nous détaillons l'évolution de chacune des radiotoxicités sur les figures 4.21 et 4.22.

Ces courbes permettent d'identifier les noyaux responsables de la plus haute radiotoxicité lors du retraitement de chacun des combustibles.

Au début de la mise en place de la filière thorium, l' ^{232}U joue le rôle le plus important concernant la radiotoxicité des actinides perdus au retraitement pendant les quelques centaines d'années suivant chaque retraitement. A partir de quelques dizaines d'années d'utilisation, le ^{238}Pu devient plus radiotoxique que l' ^{232}U dans les premières centaines d'années suivant le recyclage. Passé quelques milliers d'années, les descendants de l' ^{233}U présent initialement deviennent prépondérants, quel que soit le numéro du cycle considéré. Il faut noter que la plus haute radiotoxicité générée par le retraitement du combustible de la filière thorium provient principalement

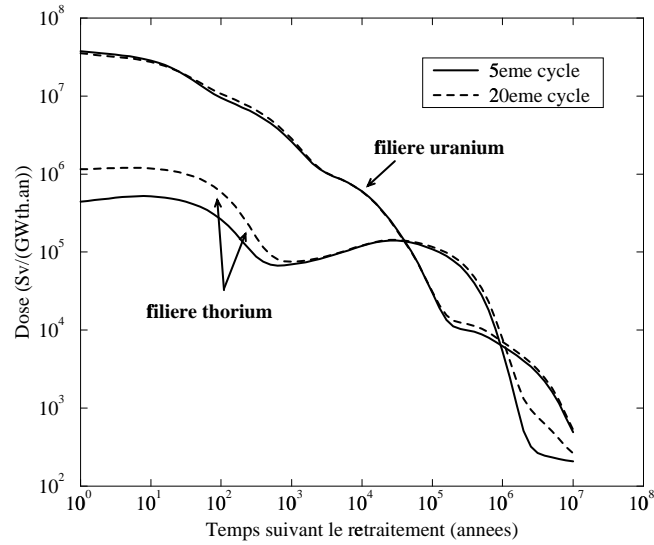


FIG. 4.20 – Comparaison des radiotoxicités des actinides perdus au 5^{ème} et au 20^{ème} retraitement lors d'un recyclage de type 1.

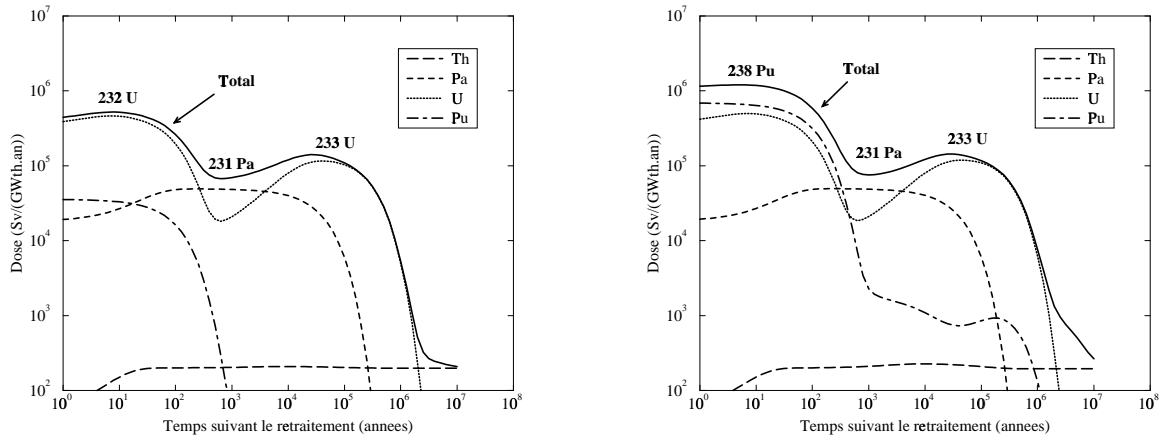


FIG. 4.21 – Détail de la radiotoxicité des actinides perdus au 5^{ème} et 20^{ème} retraitement de la filière thorium.

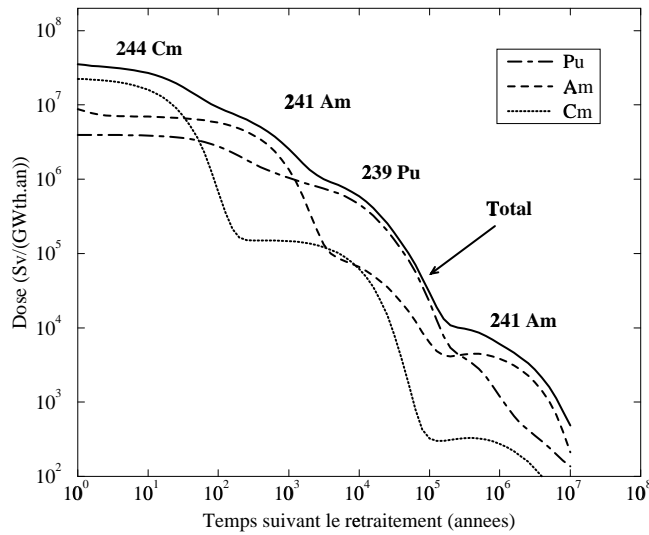


FIG. 4.22 – *Détail de la radiotoxicité des actinides perdus au 5^{ème} retraitement de la filière uranium (la décomposition est identique pour le 20^{ème} retraitement).*

de l'uranium, qui est l'élément fissile de la filière, et ceci sur une période de l'ordre du million d'années. Par contre, en ce qui concerne la filière uranium, divers éléments interviennent selon la période concernée ; le ^{244}Cm est le plus radiotoxique pendant les quelques dizaines d'années suivant le recyclage du combustible, ensuite, l' ^{241}Am et le ^{239}Pu deviennent tour à tour prépondérants.

Il peut sembler intéressant de tracer l'évolution de la radiotoxicité des actinides perdus au retraitement en fonction du numéro du recyclage, et ceci pour différents temps après le recyclage (figure 4.23).

On observe ainsi que la filière uranium sature rapidement, c'est à dire qu'à partir du 5^{ème} cycle, la radiotoxicité générée par les actinides perdus au retraitement est relativement indépendante du numéro du cycle, et ceci pour différents temps suivant le recyclage. En ce qui concerne la filière thorium, la radiotoxicité induite lors du recyclage ou 100 ans après n'a pas encore saturé après le 20^{ème} cycle (soit 100 ans d'utilisation en réacteur). Ceci s'explique par le fait que la production de ^{238}Pu (principal responsable de la radiotoxicité) nécessite de nombreuses captures neutroniques successives sur les noyaux initialement présents en grande quantité, ce qui induit un délai important avant la saturation du nombre de ces noyaux (cf figure 4.18).

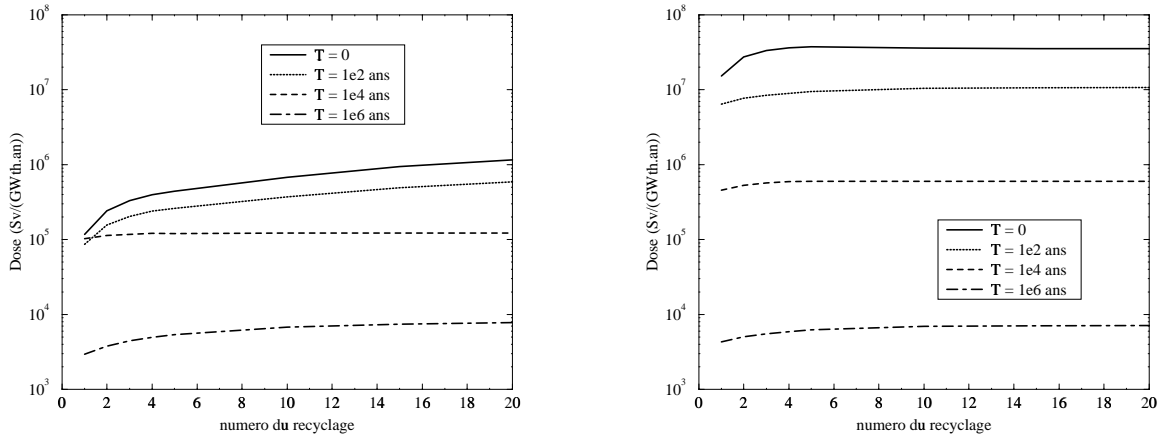


FIG. 4.23 – Evolution de la radiotoxicité en fonction du numéro de recyclage (chaque recyclage comprend 5 ans en réacteur et 5 ans de refroidissement) à différents temps suivant le recyclage du combustible.

4.4.2 Recyclage de type 2

Ce type de retraitement est beaucoup plus simple à effectuer d'un point de vue chimique, puisque seuls les noyaux fissiles sont séparés du stock de produits de fission. Il apparaît donc intéressant d'étudier et de comparer les radiotoxicités des actinides perdus lors de ce type de retraitement, afin de déterminer dans quelle mesure un retraitement poussé (de type 1) est nécessaire à chacune des filières. Nous exposerons dans ce paragraphe uniquement les radiotoxicités des actinides rejetés. L'évolution du réacteur lui même n'est pas affectée par ce type de recyclage, cependant, l'évolution du stock est nettement différente, puisque dans le premier cas, les noyaux recyclés peuvent être consommés par fission dans le réacteur. La comparaison directe des deux inventaires est donc relativement délicate, puisqu'elle doit prendre en compte à la fois les rejets et l'inventaire des réacteurs. Nous présenterons ultérieurement une comparaison de la radiotoxicité des inventaires pour les deux filières en fonction du type de recyclage.

La figure 4.24 montre le détail de la radiotoxicité induite par le 20^{ème} recyclage du combustible pour chacune des filières.

Plusieurs différences apparaissent avec le premier type de recyclage. Tout d'abord, l'intensité de la radiotoxicité est multipliée par un facteur 30 environ pour la filière uranium et 70 pour la filière thorium pendant les premières années suivant le recyclage. Il faut être prudent en comparant ces deux types de recyclages car dans le cas du ^{238}Pu par exemple, la partie recyclée dans le retraitement de type 1 est comptée dans l'inventaire, dans le retraitement de type 2, tout le ^{238}Pu est compté dans les déchets à chaque retraitement. Globalement, le fait de recycler tout le combustible permet de réduire le stock total de certains noyaux seulement.

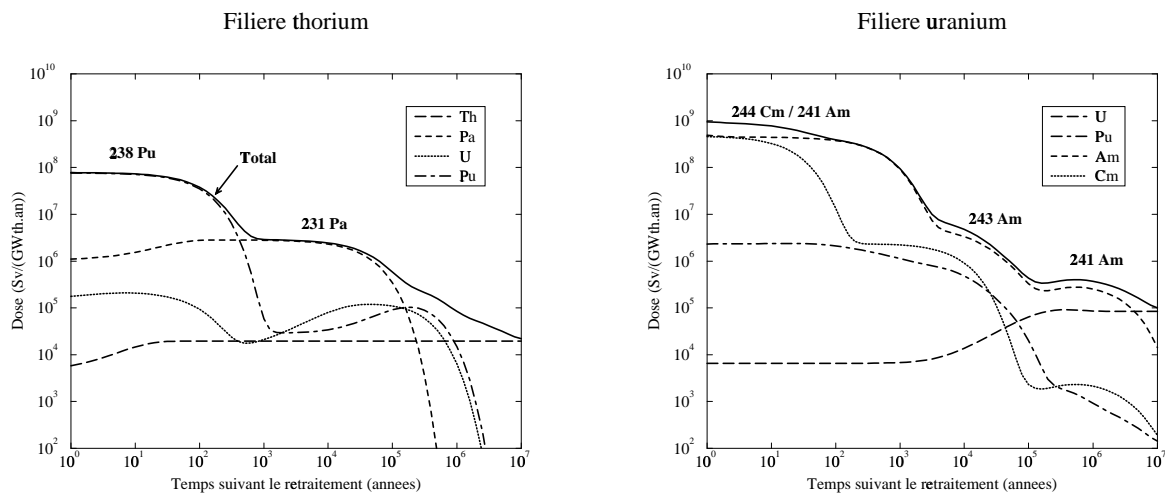


FIG. 4.24 – *Détail des radiotoxicités des actinides perdus lors du 20^{ème} recyclage de type 2 pour chacune des filières.*

On observe également que dans les deux cas, le détail et le comportement de la radiotoxicité sont relativement différents. Concernant la filière thorium, l'effet de l' ^{232}U a bien entendu disparu puisqu'il est recyclé, de même pour le ^{239}Pu dans la filière uranium. Le ^{238}Pu joue un rôle prépondérant pendant les premières dizaines d'années suivant le recyclage de la filière thorium. Le fait de ne pas le recycler avantage sa production par rapport à sa disparition par fission. Sur une échelle de temps s'étalant de 100 ans à 200000 ans environ, le ^{231}Pa domine la radioactivité pour la filière thorium. La remontée "classique" due à l' ^{233}U est à peine visible aux alentours de 400000 ans. Les rejets de la filière uranium sont dominés sur toute l'échelle de temps considérée par les isotopes de l'américium. Le ^{244}Cm induit une radiotoxicité du même ordre de grandeur que le ^{241}Am durant les premières dizaines d'années. Le fait de ne pas recycler l'américium permet de diminuer la production de ^{244}Cm , mais inversement, la production d'américium lui-même est favorisée par rapport à sa disparition par capture ou fission.

La figure 4.25 montre l'évolution de la radiotoxicité des actinides perdus au retraitement pour différents temps suivant chaque recyclage. Comme précédemment, la filière uranium atteint rapidement une saturation, contrairement à la filière thorium. La croissance de la radiotoxicité de la filière thorium au moment du recyclage ou 100 ans après s'explique par l'augmentation de la production de ^{238}Pu à chaque cycle, alors que pour la filière uranium le stock d' ^{241}Am et de ^{244}Cm à la fin de chaque cycle est très rapidement indépendant du numéro du recyclage.

En conclusion, on peut identifier les noyaux les plus gênants pour chacune des filières en excluant les premières dizaines d'années pendant lesquelles on peut envisager d'entreposer et de surveiller les stocks de déchets afin d'attendre que les noyaux radioactifs à vie courte ou moyenne, qu'il s'agisse de produits de fission ou d'actinides, aient disparu.

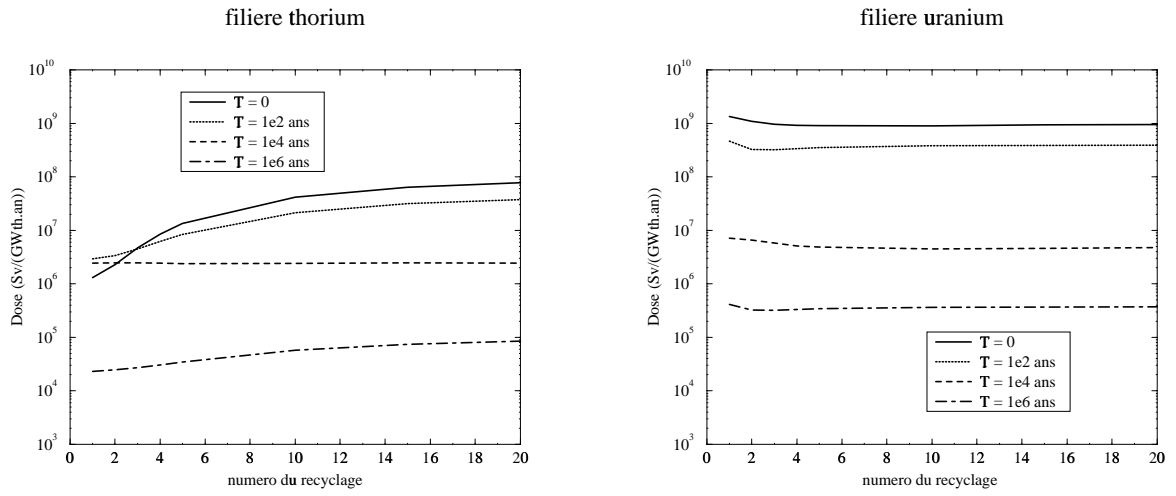


FIG. 4.25 – *Evolution de la radiotoxicité des actinides perdus au retraitement pour les deux filières en fonction du numéro du recyclage et pour différents temps suivant chaque recyclage.*

Pour la filière thorium, c'est le ^{231}Pa qui génère la radiotoxicité la plus importante sur quasiment toute l'échelle de temps étudiée. On pourrait donc envisager un retraitement où l'uranium et le protactinium seraient recyclés. D'une part, les rejets de protactinium seraient réduits à chaque retraitement, d'autre part, laisser le ^{231}Pa permet de le faire fissionner de manière significative. L'évaluation de ce type de recyclage intermédiaire est représentée sur la figure 4.26 ; après quelques années durant lesquelles le ^{238}Pu est prépondérant en terme de dose, la radiotoxicité rejoint quasiment le niveau de celle induite par un recyclage poussé de type 1.

Nous venons de décrire les avantages liés à l'utilisation de la filière thorium en terme de radiotoxicité des actinides perdus à chaque retraitement, il convient maintenant d'étudier dans le détail s'il est possible de démarrer cette filière avec les noyaux fissiles dont on dispose actuellement et la manière dont ces différents systèmes convergent vers la filière $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$ qui vient d'être décrite. Après avoir étudié ces phases de transitions, nous reviendrons sur une comparaison globale de tous ces systèmes en tenant compte des actinides perdus à chaque retraitement, ainsi que de l'inventaire final de chaque réacteur.

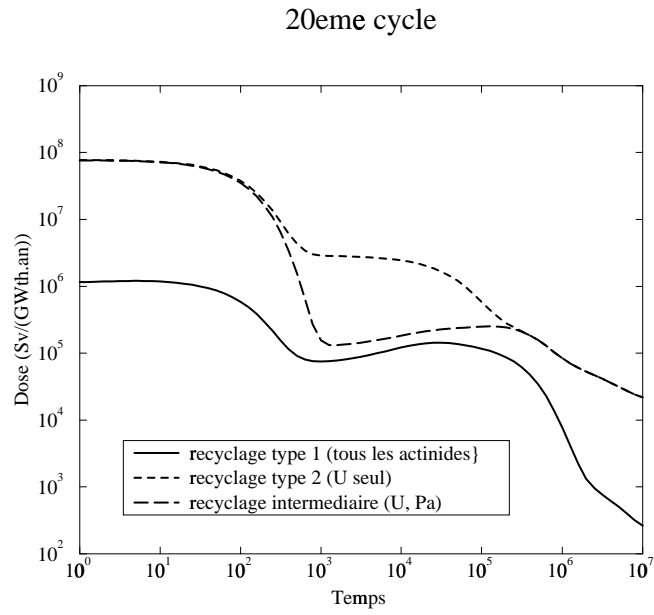


FIG. 4.26 – Comparaison des deux types de recyclage envisagés pour la filière thorium et d'un recyclage intermédiaire ne prenant en compte que l'uranium et le protactinium.

Chapitre 5

Etude des transitions possibles vers la filière thorium

5.1 Considérations générales

Nous avons déterminé précédemment les caractéristiques principales de la filière $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$. Cette filière semble apporter d'énormes avantages quant à la réduction de déchets nucléaires, notamment en terme de production d'actinides mineurs hautement radiotoxiques et de pertes au retraitement (figures 4.21, 4.22 et 4.24). Il convient maintenant d'étudier dans quelles conditions il est possible de passer à cette filière à partir des matériaux dont on dispose aujourd'hui. Diverses solutions peuvent être envisagées, à commencer par l'irradiation de barreaux de thorium dans des réacteurs thermiques classiques. Des études [44, 45] ont montré qu'il était possible de produire de l' ^{233}U en quantité significative sans perturber le comportement d'un réacteur de type REP. Des expériences ont été menées en Inde [46] où les gisements de thorium sont importants et confirment la possibilité de produire de l' ^{233}U dans des réacteurs thermiques critiques.

Les systèmes hybrides à spectre rapide peuvent être une solution avantageuse; nous exposons dans ce chapitre les caractéristiques des différentes filières permettant de passer de façon continue à la filière thorium à partir des matériaux dont on dispose (minerai naturel, uranium enrichi et plutonium industriel).

Une première idée est de placer un cœur de thorium pur autour d'une cible de spallation afin de produire de l' ^{233}U par capture neutronique. Ceci correspond d'ailleurs à la première proposition de système hybride [13]. Cette méthode a le grand inconvénient d'être coûteuse en énergie. Nous décrivons ses caractéristiques afin de donner une idée de l'énergie à dépenser avant d'arriver à une filière thorium s'entretenant d'elle-même. Une autre voie est d'utiliser le combustible actuel (^{235}U ou Pu) plongé dans une matrice fertile de thorium. Peu à peu, l' ^{233}U remplacerait le combustible initial disparaissant par fission et n'étant pas régénéré. Nous

présentons dans ce chapitre les caractéristiques des trois possibilités envisagées. Pour les cas avec combustible, les simulations sont menées de la même manière que pour l'étude comparative entre les filières $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$ et $^{nat}\text{U} / \text{Pu}$; nous détaillerons les résultats correspondant au premier type de recyclage (cf figure 4.11) et présenterons les résultats du deuxième type de recyclage lors de la comparaison globale des filières envisagées (en fin de ce chapitre). La filière commençant avec le thorium seul quant à elle, appelle quelques modifications que nous décrivons maintenant.

5.2 Thorium seul

Le système étudié est relativement simple ; les neutrons créés par spallation dans la cible se propagent dans la matrice de thorium et produisent de l' ^{233}U par capture neutronique. Au début de l'utilisation d'un tel système, il n'y a quasiment aucune fission dans le cœur puisque le ^{232}Th fissionne très peu même à haute énergie. Petit à petit, l' ^{233}U créé se met à fissionner de manière significative. Pour calculer l'évolution, nous fixons l'intensité du faisceau, contrairement à ce qui a été fait précédemment, où la puissance du réacteur était fixée. Dans ce cas, la puissance se calcule d'après la relation 2.12:

$$P = I \frac{N_s}{\nu} \frac{k_s}{1 - k_s} \varepsilon_{fis} \quad (5.1)$$

en exprimant ε_{fis} en eV. Cette étude a pour but de donner un ordre de grandeur de l'énergie à dépenser pour obtenir suffisamment d' ^{233}U , nous ne procéderons donc à aucun retraitement. Nous irradiions simplement le cœur de thorium pendant 15 ans. Il est à noter que les éléments de structure sont soumis en 15 ans à un flux beaucoup plus faible que lors d'une irradiation de 5 ans en réacteur de puissance. Le tableau 5.1 montre les caractéristiques du système choisi.

Proportion volumique de plomb	50%
Volume du cœur	4m ³
Masse de thorium	15.6 t
Energie des protons incidents	1 GeV
Intensité du faisceau	20 mA

TAB. 5.1 – *Caractéristiques principales du système au thorium étudié.*

L'intensité de faisceau a été choisie afin d'être réaliste. Quant au volume, il a été choisi suffisamment grand pour favoriser les captures neutroniques sur le thorium (aux dépens des fuites) tout en gardant un volume du même ordre de grandeur que celui des réacteurs jusque là étudiés.

La figure 5.1 montre l'évolution de la concentration en ^{233}U dans le cœur du réacteur. On

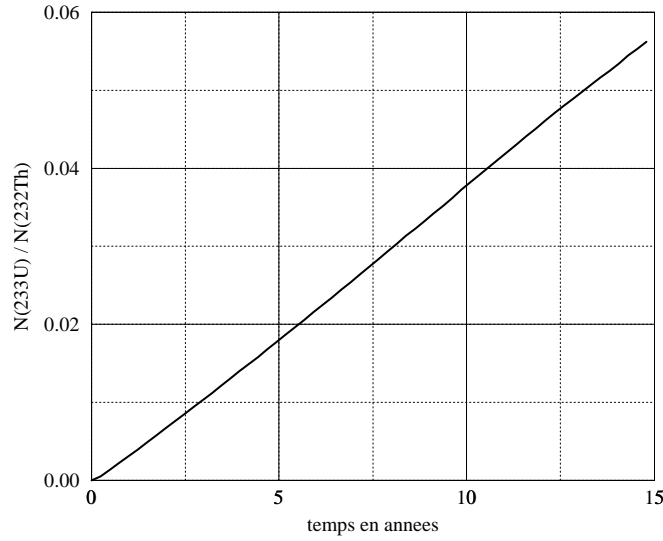


FIG. 5.1 – Evolution de la concentration en ^{233}U par rapport au ^{232}Th en fonction du temps.

observe que 15 années d’irradiation ne suffisent pas à atteindre la proportion d’équilibre entre ^{232}Th et ^{233}U qui est de l’ordre de 10%. Ainsi, le coefficient de multiplication k_s n’atteindra pas une valeur très élevée après 15 ans d’irradiation. De plus l’empoisonnement dû aux produits de fission devient rapidement significatif, ce qui conduit à une saturation encore plus rapide du coefficient de multiplication (figure 5.2).

Lors de l’évolution du système, l’intensité du faisceau est fixée, ainsi, l’augmentation du nombre de noyaux d’ ^{233}U provoque une augmentation de la puissance thermique du réacteur (figure 5.3).

D’après les calculs effectués au chapitre 2, il est possible de déterminer à quel moment le système devient producteur d’énergie. D’après 2.12 le gain total du système (en tenant compte des rendements de l’accélérateur et des échangeurs thermiques) s’écrit

$$G = \eta_{acc}\eta_{éch} \frac{N_s}{\nu} \frac{k_s}{1 - k_s} \frac{\varepsilon_{fis}}{E_p} \quad (5.2)$$

où η_{acc} et $\eta_{éch}$ sont les rendements respectifs de l’accélérateur et des échangeurs thermiques du réacteur. Ainsi, le gain devient supérieur à 1 lorsque k_s vérifie

$$k_s > \frac{1}{1 + \frac{N_s \varepsilon_{fis} \eta_{acc} \eta_{éch}}{\nu E_p}} \quad (5.3)$$

L’application numérique (cf tableau 2.3) donne

$$k_s > 0.75 \quad (5.4)$$

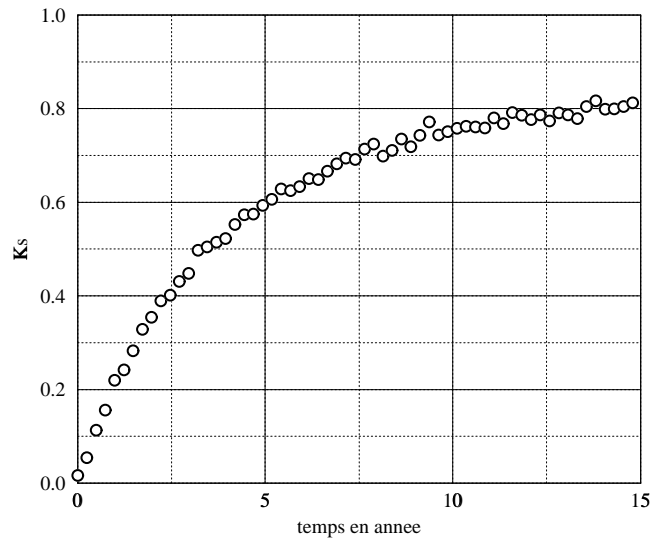


FIG. 5.2 – *Evolution du facteur de multiplication k_s en fonction du temps à intensité de faisceau fixée à 20 mA.*

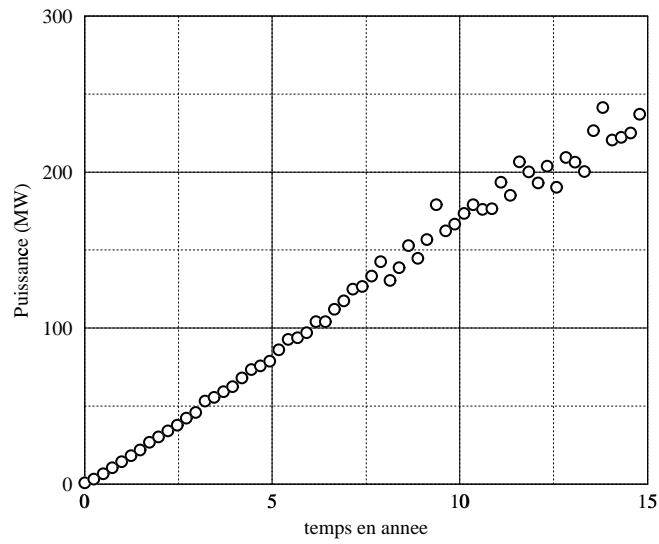


FIG. 5.3 – *Evolution de la puissance du réacteur en fonction du temps à intensité de faisceau fixée à 20 mA.*

en ayant choisi des rendements pour l'accélérateur et les échangeurs thermiques de l'ordre 40%.

Le système ne devient producteur d'énergie qu'après dix années d'irradiation environ. Le bilan énergétique au bout de 15 ans est représenté dans le tableau 5.2. On constate qu'en 15 ans de fonctionnement, ce réacteur a produit autant d'énergie qu'il en a consommée.

Energie thermique produite	1.8 GW _{th} .an
Energie électrique produite	0.72 GW _e .an
Energie totale consommée	0.75 GW _e .an
Quantité d' ²³³ U produit	3000 moles

TAB. 5.2 – *Bilan énergétique du système thorium et production d'²³³U par l'irradiation de thorium par un faisceau de protons de 1 GeV d'intensité 20 mA.*

Un tel réacteur peut donc produire près de 3000 moles d'²³³U en 15 ans d'irradiation (soit environ 800 kg de ²³³UO₂). D'après les résultats du chapitre 4 (cf figure 4.15) un réacteur de 500 MWth nécessite environ 5000 moles d'²³³U ; il faudrait donc 2 systèmes au thorium environ (de 4 m³) irradiés pendant 15 ans pour fournir l'²³³U nécessaire à un réacteur de 500 MWth. Même si la solution étudiée n'est pas optimisée, le démarrage de la filière thorium par des réacteurs à neutrons rapides sans matériau fissile apparaît donc peu réaliste du fait du délai trop important avant d'obtenir une filière auto-régénératrice et des réacteurs de gain acceptable.

Nous n'avons pas abordé dans ce travail l'étude d'un système thorium à spectre thermique, qui semblent plus avantageux du point de vue de production d'²³³U.

5.3 Utilisation d'uranium enrichi

L'uranium naturel, peu fissile, ne peut être utilisé directement en spectre rapide. Un enrichissement de 3% en ²³⁵U utilisé dans les REP est encore insuffisant pour obtenir un facteur de multiplication k_s raisonnable pour produire de l'énergie. Nous choisissons ici de tester deux enrichissements réalistes (d'un point de vue technologique) en ²³⁵U : 33% et 90%.

Comme nous le verrons, un enrichissement de 33% conduit à une configuration initiale comprenant environ deux fois plus de thorium que d'uranium. Un enrichissement plus faible conduirait à produire quasiment autant de ²³⁹Pu par capture sur l'²³⁸U que d'²³³U par capture sur le ²³²Th. Nous avons donc choisi de limiter l'enrichissement à 33% afin de se maintenir dans l'étude d'une filière de transition vers la filière thorium. De plus, nous simulerons le système ²³²Th/²³⁵U pur, afin de bien comprendre les effets respectifs de l'²³⁵U et de l'²³⁸U sur la radio-toxicité produite.

On s'attend à voir une notable différence en ce qui concerne la production d'actinides, puisque la quantité d'²³⁸U dans le réacteur varie considérablement d'un cas à l'autre, et l'²³⁸U constitue,

dans ce système, une source importante de production d'actinides. On appelle concentration de fissile le rapport entre nombre de noyaux d'uranium (prenant en compte les deux composantes isotopiques) et le nombre total de noyaux de combustible (thorium et uranium).

Les caractéristiques initiales ont été déterminées de la même manière que précédemment ; on recherche d'abord un facteur de multiplication k_s de l'ordre de 0.95 à 0.98. La concentration en fissile étant fixée par le maintien de la réactivité sur un cycle. La puissance spécifique utilisée précédemment (330 W/cm^3) est conservée. Nous présentons l'évolution des matériaux en utilisant un retraitement de type 1 décrit précédemment, comme nous l'avons fait pour les filières thorium et uranium. Les caractéristiques initiales du système sont données dans le tableau 5.3.

Enrichissement	33 %	90 %	100 %
Volume cœur	3.0 m ³	4.0 m ³	4.0 m ³
Puissance	390 MW	520 MW	520 MW
Concentration en uranium	45 %	17 %	15 %
Masse ²³² ThO ₂	6.5 t	12.9 t	13.3 t
Masse ²³⁸ UO ₂	3.5 t	0.3 t	-
Masse ²³⁵ UO ₂	1.7 t	2.4 t	2.3 t

TAB. 5.3 – *Caractéristiques initiales du réacteur utilisé pour l'étude du système ²³²Th / ²³⁵U.*

La différence principale entre les trois degrés d'enrichissements étudiés est la proportion d'²³⁸U dans le réacteur par rapport au nombre total de noyaux de combustible ; la proportion d'²³⁵U est quant à elle relativement indépendante de l'enrichissement initial du minerai d'uranium. Certains noyaux ne sont quasiment pas affectés par cette différence, notamment l'²³⁵U et le ²³⁸Pu. Par ailleurs, tant que les enrichissements considérés sont suffisamment élevés, comme nous les avons choisis, le ²³²Th reste le noyau prépondérant, et sa quantité varie peu d'un enrichissement à l'autre. Ainsi, la production d'²³³U est peu affectée par la différence d'enrichissement. La figure 5.4 confirme ces remarques.

Nous avons également représenté sur cette figure l'évolution des noyaux considérés dans la filière ²³²Th / ²³³U étudiée précédemment afin de mesurer la vitesse de convergence du système ²³²Th / ²³⁵U vers l'état d'équilibre de la filière thorium en fonction de l'enrichissement initial de l'uranium en ²³⁵U. La présence d'²³⁵U induit une forte augmentation de la production de ²³⁸Pu comparée à la filière ²³²Th / ²³³U sur toute la durée de l'étude. Pour les autres noyaux représentés sur cette figure, la convergence vers les valeurs obtenues pour le système ²³²Th / ²³³U est beaucoup plus rapide.

La proportion d'²³⁸U dans le cœur variant fortement d'un enrichissement à l'autre, certains noyaux comme le ²³⁹Pu, et donc les américium et curium plus lourds, sont très affectés par les différents type d'enrichissements étudiés. La figure 5.5 représente l'évolution des certains noyaux

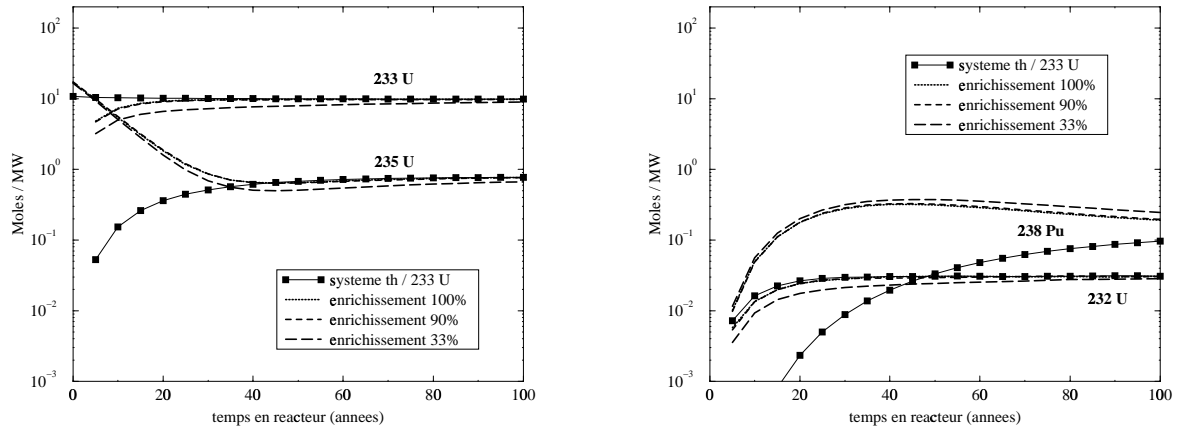


FIG. 5.4 – Evolution du nombre de noyaux d' ^{232}U , ^{233}U , ^{235}U et de ^{238}Pu pour différents enrichissements initiaux en ^{235}U et pour le système $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$.

importants dans le comportement du réacteur ou dans la radiotoxicité induite par les pertes au retraitement pour tous les enrichissements envisagés et pour le cas de la filière $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$.

Comparons maintenant cette filière $^{232}\text{Th} / ^{235}\text{U}$ avec la filière $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$ décrite précédemment. Une différence notable est le fait que l'on régénère les noyaux qui ont fissionné par des noyaux de nature différente. Les sections efficaces globales de fission peuvent donc évoluer de manière significative avec le temps. La figure 5.6 montre l'évolution de la section efficace de fission moyennée sur l' ^{233}U et l' ^{235}U avec le temps; il est à noter que l'évolution de cette section efficace dépend peu de l'enrichissement en ^{235}U puisque la quantité absolue d' ^{235}U reste quasiment inchangée, comme nous l'avons vu précédemment.

La section efficace de fission moyennée sur l' ^{233}U , l' ^{235}U et le ^{239}Pu augmente sensiblement avec le temps. Ceci s'explique par le fait que l' ^{233}U a une plus grande section efficace de fission que l' ^{235}U . La compensation de l'empoisonnement dû à l'apparition de produits de fission est assurée par cette augmentation de section efficace de fission moyennée sur les trois noyaux fissiles principaux de la filière. De plus, on observe que dans le cas d'un fort enrichissement initial en ^{235}U , en quelques dizaines d'années, plus de 90% des fissions du cœur proviennent de l' ^{233}U . Si l'enrichissement en ^{235}U est trop faible, la domination de l' ^{233}U dans les fissions du cœur est retardée du fait de la proportion significative des fissions du ^{239}Pu (20 % des fissions après 25 ans d'utilisation en réacteur dans le cas d'un enrichissement initial en ^{235}U de 33 %).

Dans tous les cas, cette filière converge vers le même état d'équilibre que la filière $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$ décrite dans le chapitre précédent. Cependant, la convergence est d'autant plus rapide que l'enrichissement initial en ^{235}U est élevé; dans le cas d'un enrichissement initial faible en ^{235}U , il existe encore plus d'un ordre de grandeur d'écart sur le nombre de noyaux de plutonium au

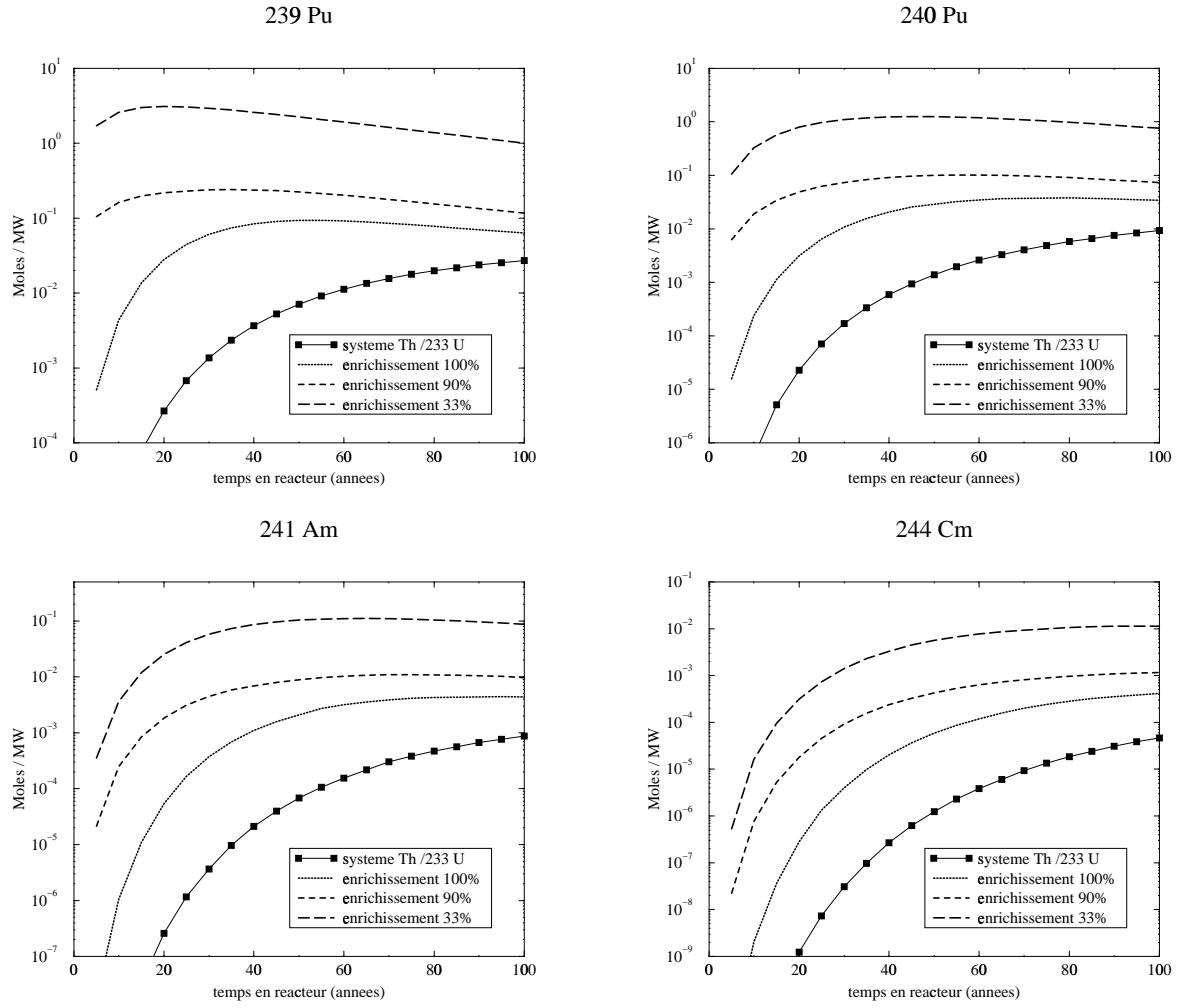


FIG. 5.5 – Evolution du nombre de noyaux de ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Am et de ^{244}Cm pour différents enrichissements initiaux en ^{235}U et pour le système $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$.

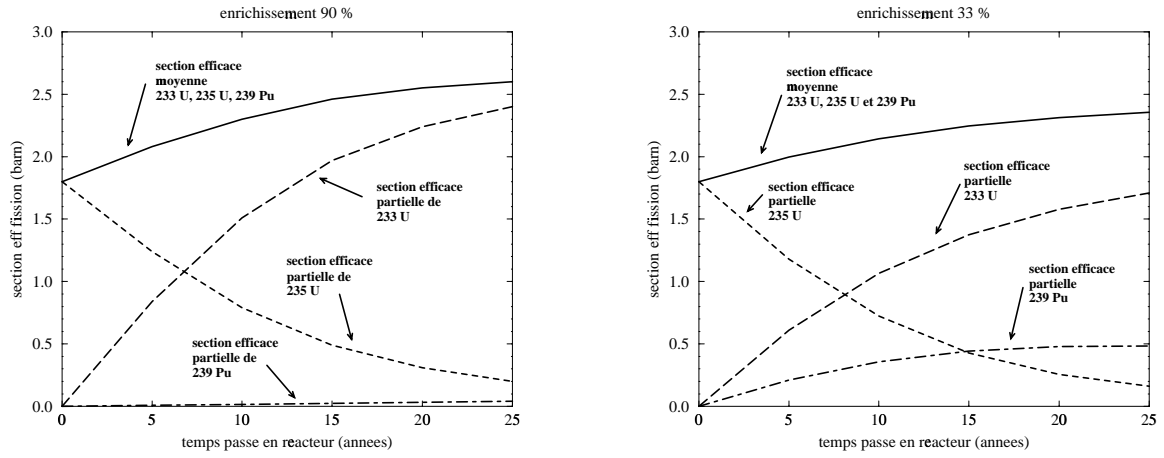


FIG. 5.6 – Evolution de la section efficace de fission moyennée sur les trois principaux noyaux fissiles du système et sections efficaces partielles de fission de chacun de ces noyaux $\frac{\sigma_i N_i}{N_{235\text{U}} + N_{233\text{U}} + N_{239\text{Pu}}}$ pour deux enrichissements en ^{235}U (33 % et 90 %)

terme de 100 ans d'utilisation en réacteur, comme le montre la figure 5.5.

La figure 5.7 représente l'évolution du flux intégré dans le cœur en fonction du temps passé en réacteur. On observe que ce flux ne varie pratiquement pas sur la durée de l'étude. La puissance du réacteur étant fixée, le flux reste tout au long de l'évolution proportionnel à $N_{\text{fissile}} \sigma_{\text{fissile}}^{\text{fission}}$. Il apparaît donc que l'augmentation de la section efficace moyennée sur les principaux noyaux fissiles est compensée par une diminution du nombre total de ces mêmes noyaux au cours du temps.

Radiotoxicité

Nous présentons sur la figure 5.8 le détail de la radiotoxicité induite par le 5^{ème} retraitement du combustible pour chacun des enrichissements envisagés, soit après 25 ans d'utilisation en réacteur. On peut quantifier ainsi en terme de radiotoxicité la quantité plus importante de ^{239}Pu et de tous les actinides qui en découlent lorsque l'enrichissement initial en ^{235}U est faible. Dans tous les cas cependant, la radiotoxicité durant les quelques dizaines d'années suivant le retraitement est dominée par le ^{238}Pu issu des captures successives (n, γ) sur les noyaux d' ^{235}U initiaux. Comme nous l'avons vu précédemment, l'évolution du nombre de noyaux de ^{235}U et donc de ^{238}Pu est peu dépendante de l'enrichissement initial de l'uranium en ^{235}U , la radiotoxicité à l'instant du retraitement est donc peu affectée par les différents taux d'enrichissements envisagés.

Quelques milliers d'années suivant le retraitement, l'effet de la quantité importante d' ^{238}U

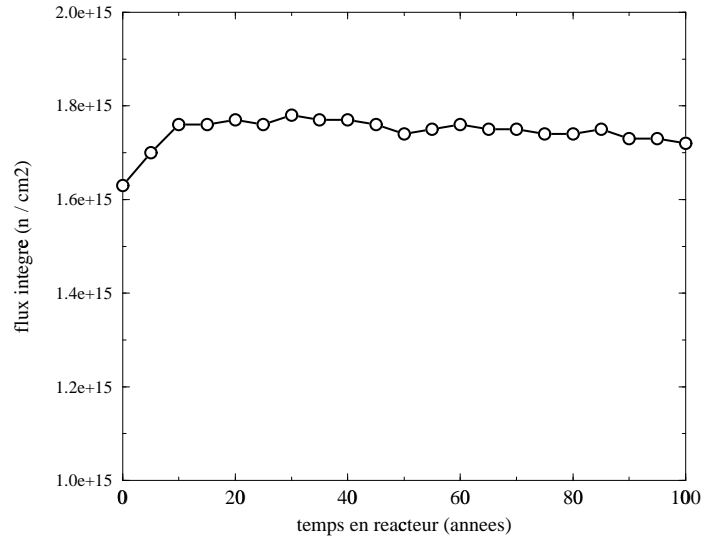


FIG. 5.7 – Valeur intégrée du flux en fonction du temps passés en réacteur pour un enrichissement initial en ^{235}U de 90 %.

dans le cas d'un enrichissement initial faible en ^{235}U se traduit par une radiotoxicité supplémentaire due au ^{239}Pu et à l' ^{241}Am . Ensuite, l' ^{233}U devient dominant en terme de radiotoxicité, et les différents enrichissements sont à peu près comparables à partir de cette période.

Si l'on étudie maintenant le comportement de la radiotoxicité des actinides perdus au retraitement en fonction du numéro de recyclage (figure 5.9) et de l'enrichissement initial en ^{235}U , on s'aperçoit que le faible écart observé à l'instant du retraitement se creuse au fur et à mesure que l'on recycle le combustible. Cependant la plus gros écart apparaît environ 1000 ans après le retraitement et ne dépend quasiment pas du numéro de recyclage. Rappelons que cet écart est dû au ^{239}Pu et au ^{241}Am produits à partir des captures sur l' ^{238}U présent initialement.

On remarque également qu'un enrichissement de 90% permet d'atteindre des performances en terme de radiotoxicité tout à fait comparables à celles d'un combustible "idéal" $^{232}\text{Th} / ^{235}\text{U}$ pur.

La solution $^{232}\text{Th} / ^{235}\text{U}$ (90%) semble tout à fait performante pour démarrer des réacteurs en utilisant du minerai naturel et converger rapidement vers la filière $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$ décrite dans la chapitre précédent. Ce scénario suppose implicitement que l'on ne dispose plus de plutonium pour démarrer la filière thorium. En effet, il serait tout à fait envisageable d'utiliser le plutonium produit actuellement par les réacteurs thermiques, de la même manière que l' ^{235}U a été utilisé dans cette étude.

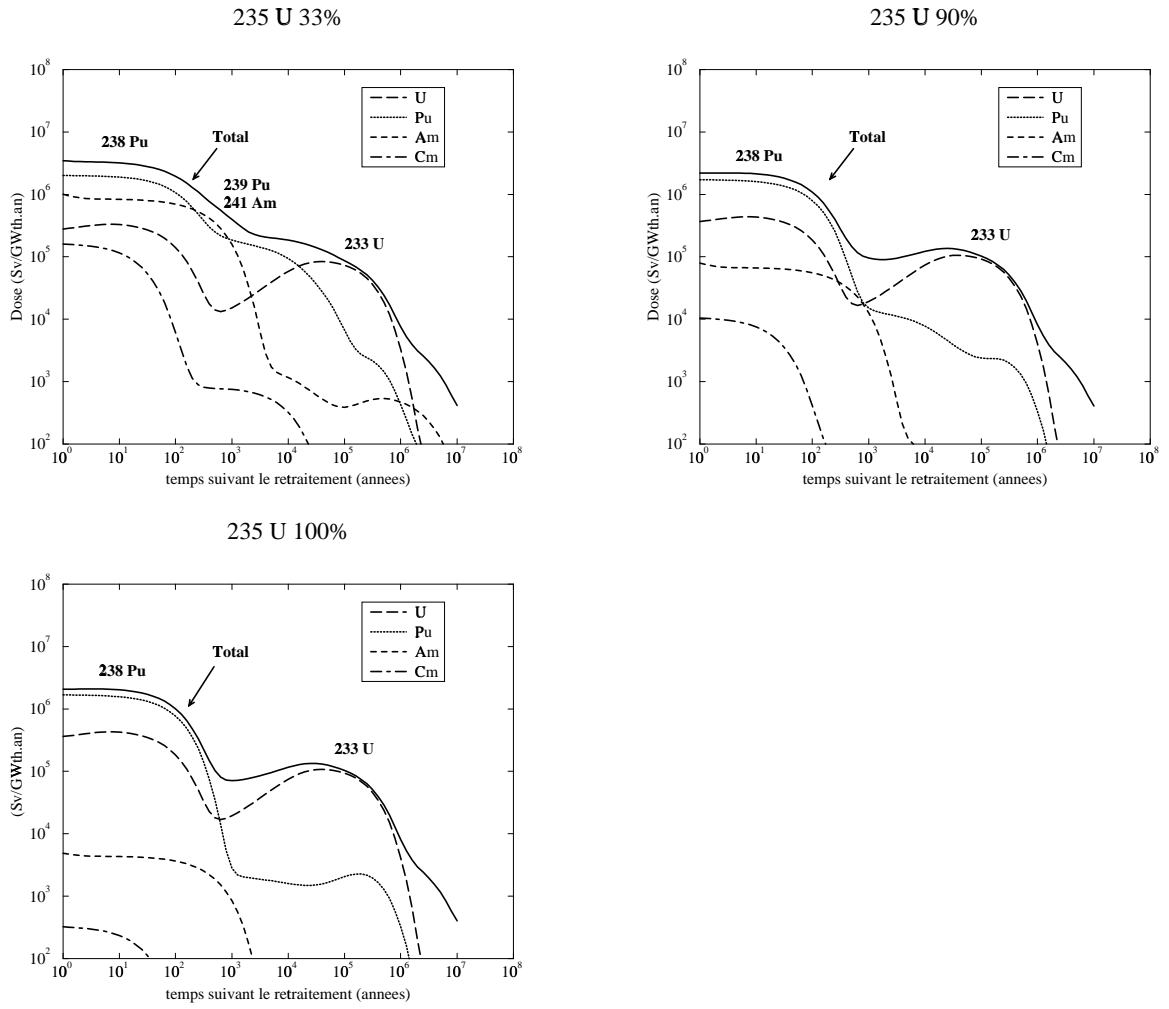


FIG. 5.8 – *Détail de la radiotoxicité des actinides perdus au 5^{ème} retraitement pour différents enrichissements initiaux en ^{235}U .*

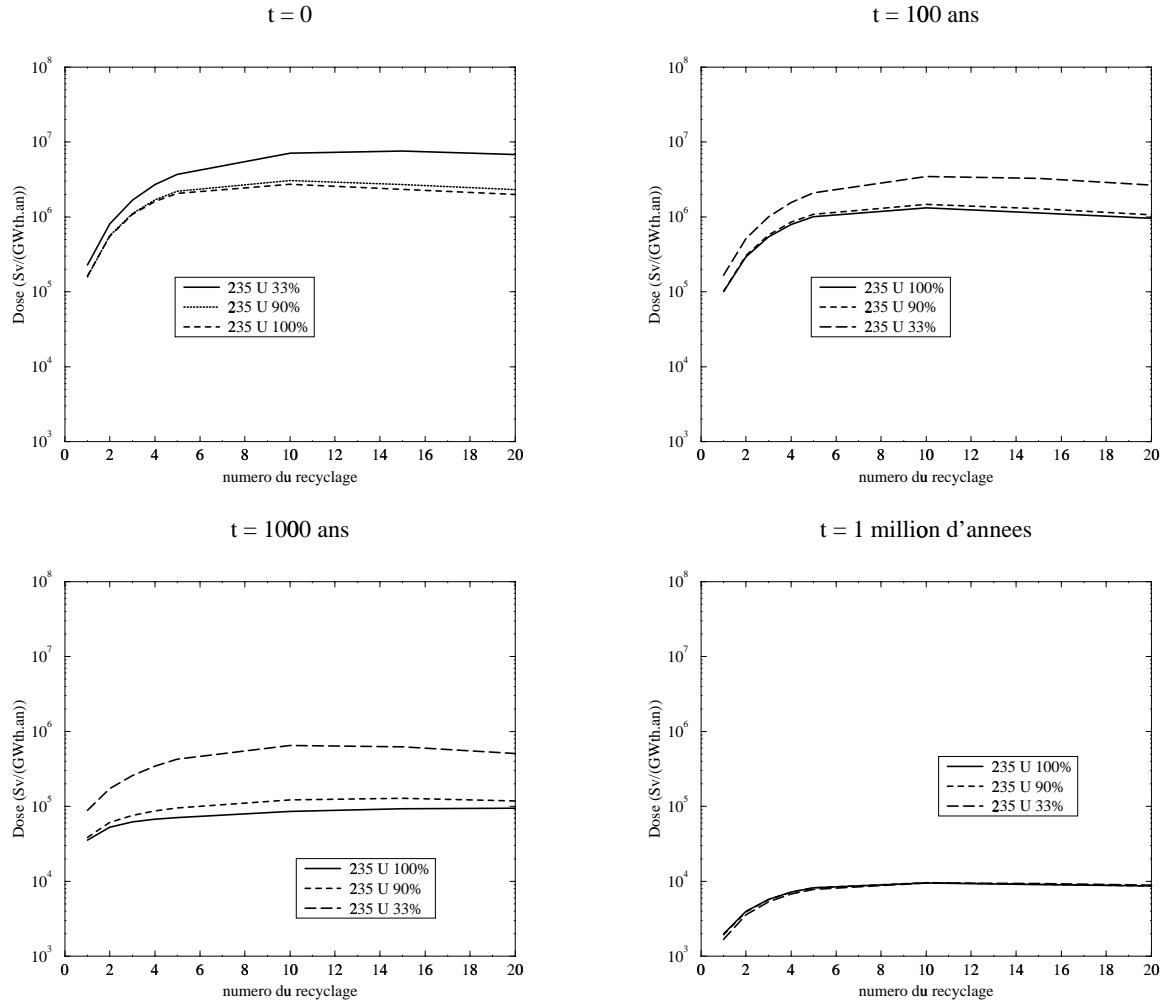


FIG. 5.9 – Evolution de la radiotoxicité en fonction du numéro de recyclage et de l'enrichissement initial en ^{235}U .

5.4 Utilisation du plutonium issu des réacteurs actuels

Dans cette étude, le plutonium utilisé est le même que dans la filière ^{nat}U / Pu. Nous rappelons que les résultats présentés dans ce paragraphe correspondent à un recyclage de type 1 où tous les actinides sont recyclés. Les caractéristiques initiales du réacteur étudié pour cette filière sont résumée dans le tableau 5.4.

Volume cœur	2 m ³
Proportion volumique plomb	50 %
Puissance	260 MW
k_s	0.97
k_{eff}	0.96
Concentration en Pu	16.5 %
Masse ^{232}Th	6.5 t
Masse Pu	1.3 t

TAB. 5.4 – *Caractéristiques initiales du réacteur utilisé pour l'étude du système ^{232}Th / Pu.*

La figure 5.10 montre l'évolution de quelques noyaux sur une durée d'utilisation de combustible de 100 ans pour le système ^{232}Th / Pu et le système $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ étudiés précédemment. On observe la rapide disparition du ^{239}Pu initial. L'évolution des noyaux jouant un rôle important dans la radiotoxicité générée par la filière uranium étudiée précédemment (^{241}Am et ^{244}Cm principalement) est également représentée. Concernant les actinides mineurs hautement radiotoxiques issus de captures successives sur les noyaux de plutonium, un maximum est atteint environ 25 ans après le début de l'utilisation de la filière, ensuite, ces noyaux sont consommés par fission. L' ^{232}U quant à lui augmente régulièrement lors de 25 premières années de la filière, et voit son stock saturer et se stabiliser à la même valeur que dans le système ^{232}Th / ^{233}U . On observe que la convergence vers l'état d'équilibre de la filière thorium est plus lente en partant d'un combustible au plutonium que d'un combustible à l'uranium enrichi. Cependant, un tel système joue le rôle d'incinérateur des stocks de plutonium actuels, tout en générant le matériau fissile de la filière thorium.

De la même manière que dans le système ^{232}Th / ^{235}U , le matériau fissile initial disparaît en étant remplacé par un matériau fissile d'une autre nature. On trace comme précédemment la valeur de la section efficace de fission moyennée sur les principaux noyaux fissiles présents dans cette filière, à savoir, ^{233}U , ^{239}Pu et ^{241}Pu (figure 5.11).

La figure 5.12 montre l'évolution du flux intégré dans le cœur du réacteur. Au départ la valeur de ce flux est proche de celle observée dans la filière ^{nat}U / Pu, puisque les noyaux fissiles sont les mêmes et ce sont eux qui règlent la valeur du flux. Ensuite, la différence vient du fait que dans un cas la matrice fertile fissionne de manière non négligeable (^{238}U et ^{235}U) alors que

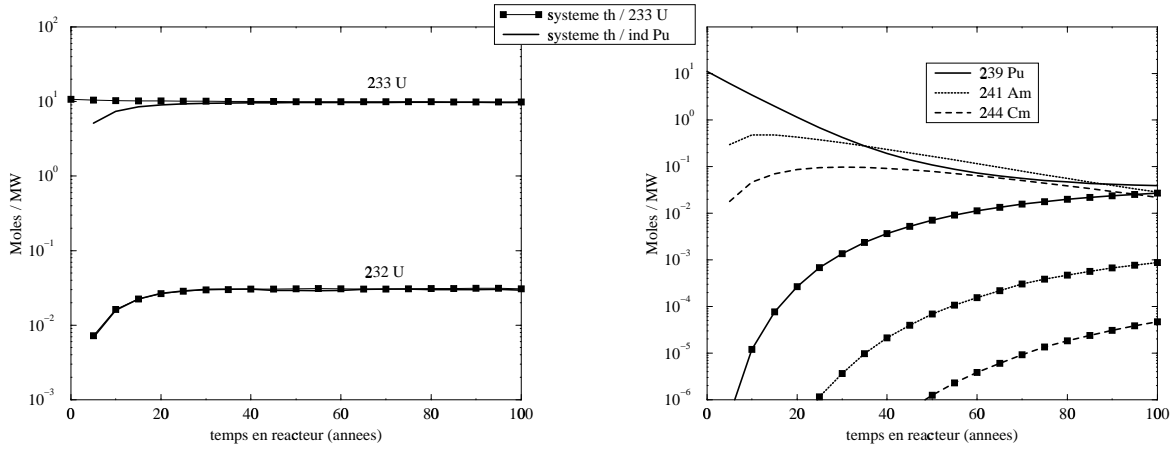


FIG. 5.10 – Evolution du nombre de noyaux de ^{239}Pu , ^{241}Am et ^{244}Cm dans les cycles $^{232}\text{Th} / \text{Pu}$ et $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$.

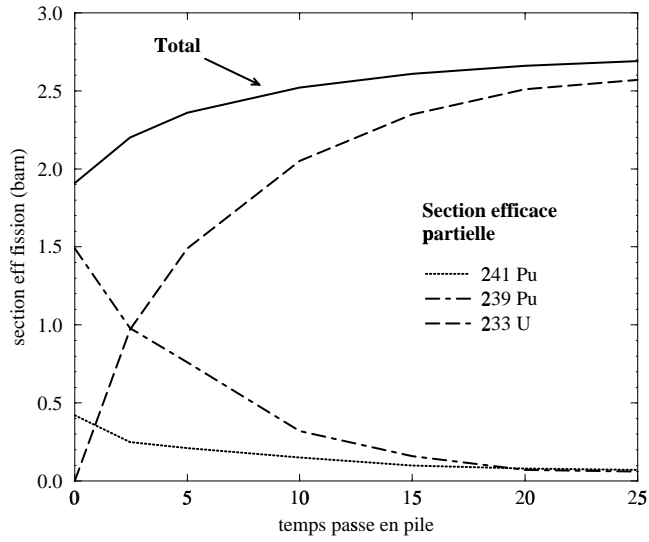


FIG. 5.11 – Evolution de la section efficace de fission moyennée sur les trois noyaux fissiles prépondérants et évolution de la section efficace partielle de chacun de ces noyaux

$$\frac{\sigma_i N_i}{N_{^{239}\text{Pu}} + N_{^{241}\text{Pu}} + N_{^{233}\text{U}}}.$$

dans le cas présent, le ^{232}Th ne fissionne quasiment pas (cf tableau 4.5). Ensuite la disparition progressive du plutonium fissile est compensée par une apparition d' ^{233}U dont la section efficace moyenne de fission est plus élevée, ce qui tend à stabiliser la valeur du flux aux alentours de $1.7 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2/\text{s}$

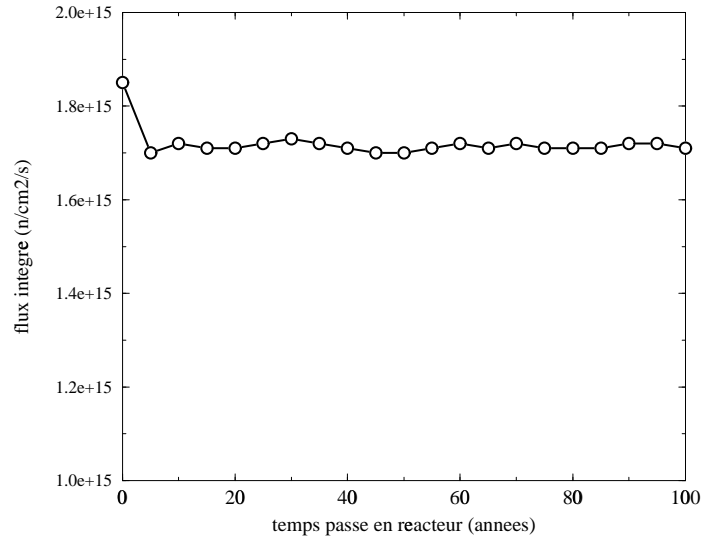


FIG. 5.12 – *Evolution du flux intégré dans la filière $^{232}\text{Th} / \text{Pu}$ en fonction du temps passé en réacteur.*

Radiotoxicité

La figure 5.13 montre le détail de la radiotoxicité des actinides perdus au retraitement au 5^{ème} et 20^{ème} cycle.

Entre le 5^{ème} et le 20^{ème} recyclage, on peut observer la forte diminution de la radiotoxicité due au ^{244}Cm et à l' ^{241}Am produits par les noyaux initiaux de plutonium. La radiotoxicité induite par la matrice fertile est prépondérante environ 100000 ans après le retraitement (^{233}U) que ce soit au 5^{ème} ou au 20^{ème} recyclage. Avant cette période, la matrice fertile est légèrement prépondérante (^{238}Pu) quelques centaines d'années après le 20^{ème} recyclage. La figure 5.14 montre l'évolution de la radiotoxicité induite par les actinides perdus au retraitement en fonction du numéro de recyclage pour différents temps suivant le recyclage. On observe que même si le thorium commence à jouer un rôle après quelques dizaines d'années, la radiotoxicité totale des actinides perdus au retraitement pendant les quelques siècles suivant le recyclage diminue régulièrement en fonction du numéro de recyclage.

Il faut noter que même après 100 ans d'utilisation, l' ^{232}U ne joue pas un grand rôle dans la

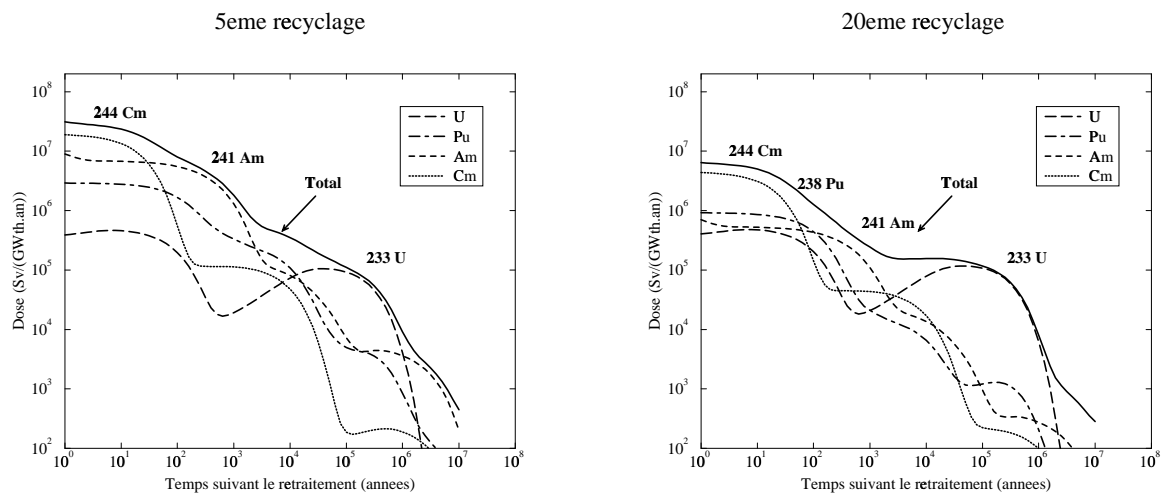


FIG. 5.13 – *Détail de la radiotoxicité des actinides perdus au 5^{ème} et 20^{ème} recyclage.*

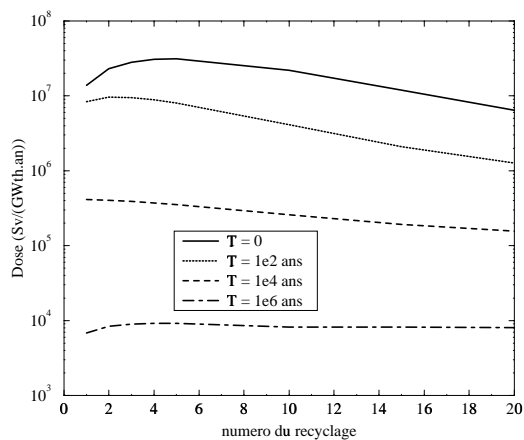


FIG. 5.14 – *Comportement de la radiotoxicité des actinides perdus au retraitement en fonction du numéro de recyclage pour différents temps suivant le recyclage.*

radiotoxicité générée par ce système. L'augmentation du nombre de noyaux d' ^{232}U et d' ^{233}U ne vient pas modifier cette radiotoxicité quel que soit le numéro de recyclage. Le système fonctionne donc comme un incinérateur de plutonium, dans la mesure où la radiotoxicité générée par la matrice fertile et la production de la matière fissile de la filière uranium sont négligeables devant la radiotoxicité induite par le stock initial de plutonium, si on excepte la période d'environ 100000 ans suivant les recyclages où l' ^{233}U joue un rôle important.

5.5 Comparaison globale des filières étudiées, discussion

Nous tentons dans cette partie de discuter des transitions possibles vers la filière thorium, en tenant compte des différents types de recyclage envisagés et de la vitesse à laquelle chacune des filières converge vers son état d'équilibre. Nous détaillons dans un premier l'évolution de la radiotoxicité des actinides perdus à chaque retraitement, ensuite, nous prenons en compte l'inventaire de chacune des filières au bout de 200 ans de production d'énergie et comparons sa radiotoxicité à celle générée par la totalité des rejets effectués.

5.5.1 Radiotoxicité des actinides perdus à chaque retraitement

Les figures 5.15 et 5.16 permettent de récapituler l'évolution de la radiotoxicité des rejets en fonction du numéro du cycle pour toutes les filières envisagées, et ceci pour les deux types de recyclage étudiés.

On peut apprécier sur ces figures l'écart existant entre les filières uranium et thorium en ce qui concerne les radiotoxicités induites par les actinides perdus à chaque retraitement. On peut également mesurer le temps nécessaire pour passer à la filière thorium à partir des matériaux fissiles dont on dispose actuellement.

Notons que lors d'un recyclage de type 2, la filière $^{232}\text{Th} / \text{Pu}$ devient moins radiotoxique que la filière $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$ à partir de quelques cycles ; ceci est dû au fait que le plutonium est recyclé dans le cas du système $^{232}\text{Th} / \text{Pu}$. L'effet du ^{238}Pu durant les premières dizaines d'années après le recyclage n'est donc pas visible dans ce cas.

L'utilisation du plutonium permet de passer de façon continue à la filière $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$, mais génère une radiotoxicité comparable à la filière uranium pendant plusieurs cycles, soit plusieurs dizaines d'années d'utilisation du plutonium en réacteur et ceci, quel que soit le type de recyclage envisagé.

D'une façon plus générale, ce résultat montre la difficulté de diminuer la radiotoxicité des stocks de plutonium actuels. La consommation des noyaux de plutonium s'accompagne d'une production d'actinides mineurs hautement radiotoxiques (^{244}Cm et ^{241}Am principalement) avant que l'effet de leur disparition ne se fasse sentir.

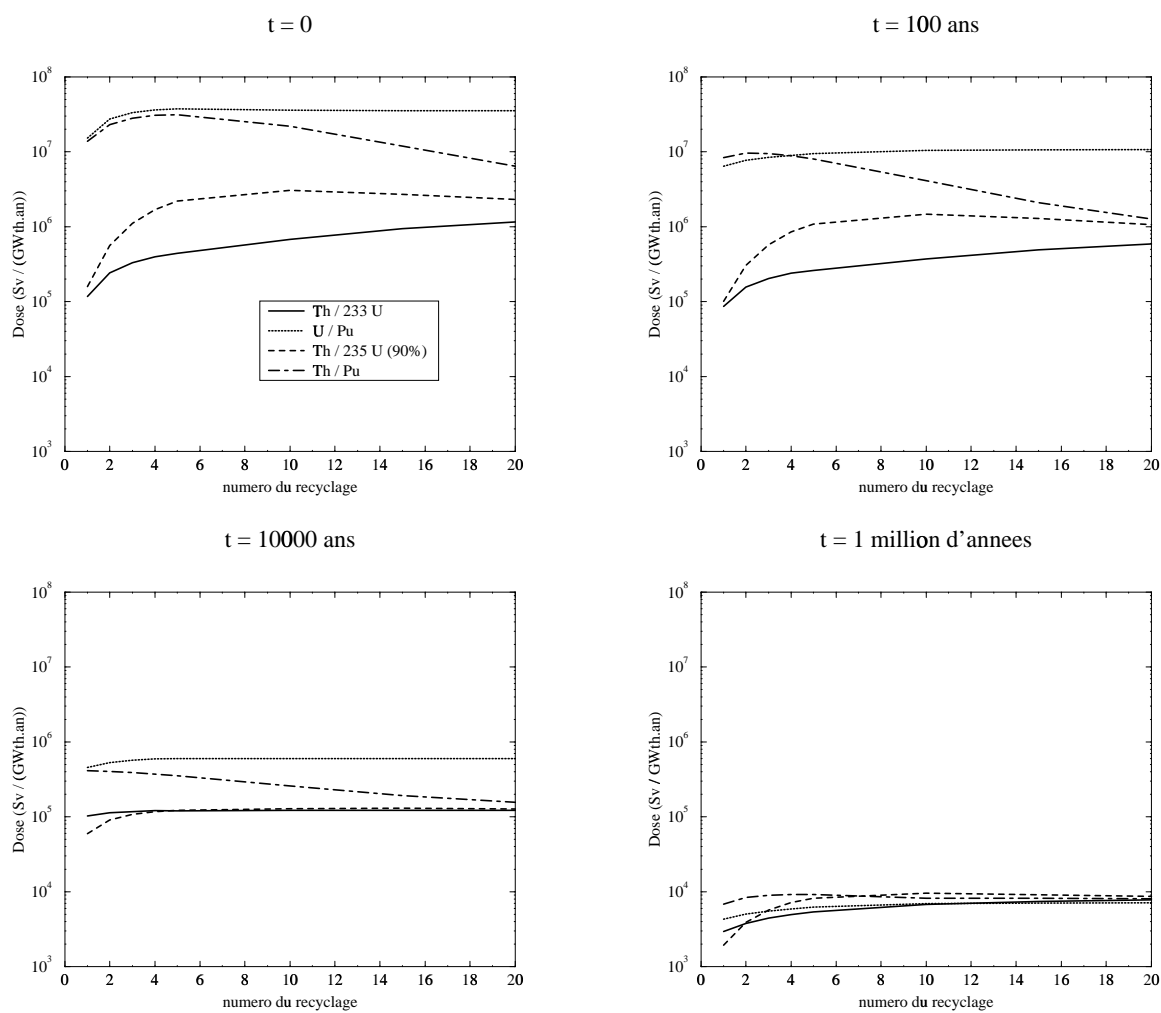


FIG. 5.15 – *Comparaison globale des radiotoxicités des actinides perdus lors d'un recyclage poussé de type 1 en fonction du numéro du recyclage.*

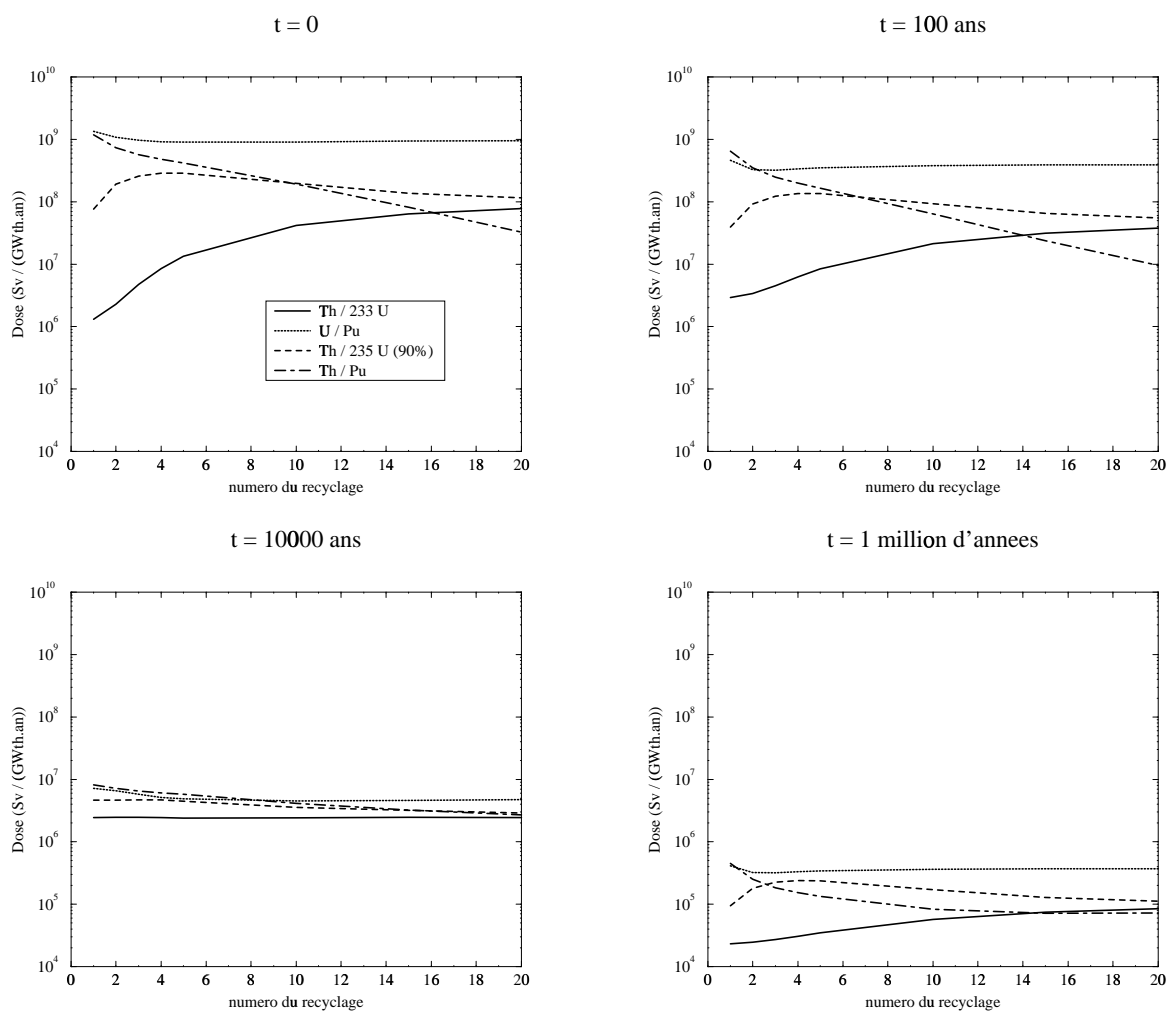


FIG. 5.16 – Comparaison globale des radiotoxicités des actinides perdus lors d'un recyclage poussé de type 2 en fonction du numéro du recyclage.

Afin de décrire la totalité de la radiotoxicité générée par une filière, nous devons tenir compte de l'inventaire de chaque réacteur, qui doit être considéré comme un déchet lors de l'arrêt de la filière ou de l'énergie nucléaire elle-même.

5.5.2 Radiotoxicité des inventaires

Afin de comparer les radiotoxicités des inventaires et des rejets effectués pendant toute la période de production d'énergie, nous choisissons de représenter ces radiotoxicités en les normalisant à la puissance "installée", en tenant compte du fait qu'un réacteur tel qu'il a été simulé ne fonctionne que la moitié du temps (cycles de 5 ans en réacteur et 5 ans de refroidissement). On envisage que le réacteur puisse fonctionner en tout temps en utilisant deux stocks de combustible en alternance. La puissance installée correspondant à un réacteur est donc égale au double de la puissance du réacteur. Nous nous plaçons donc à 200 ans de production d'énergie (100 ans pour chaque cœur utilisé en alternance).

Les figures 5.17 et 5.18 permettent de comparer la radiotoxicité des inventaires de chacune des filières (après 1000 ans de décroissance), ainsi que la radiotoxicité totale des rejets effectués pendant les 200 ans de production d'énergie.

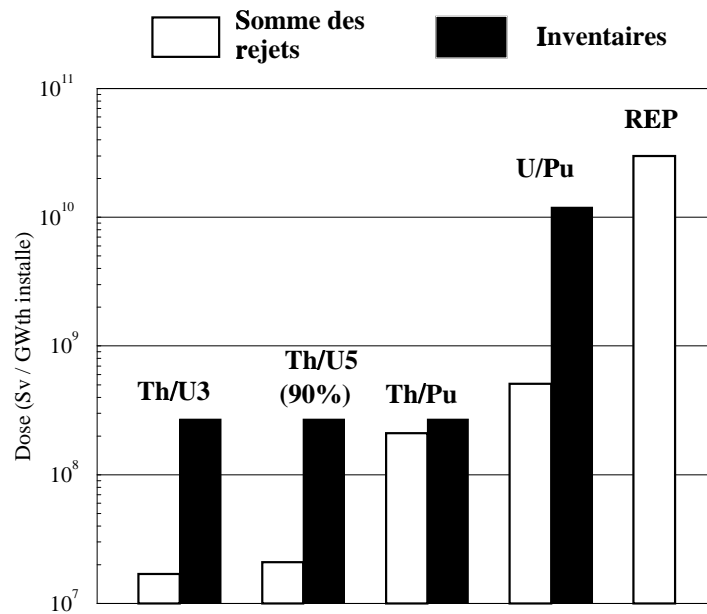


FIG. 5.17 – Comparaison des radiotoxicités des rejets et des inventaires pour le type de recyclage 1, après 200 ans de production d'énergie et 1000 ans de décroissance.

Si l'on considère le retraitement de type 1, où tous les actinides sont recyclés tous les 5 ans,

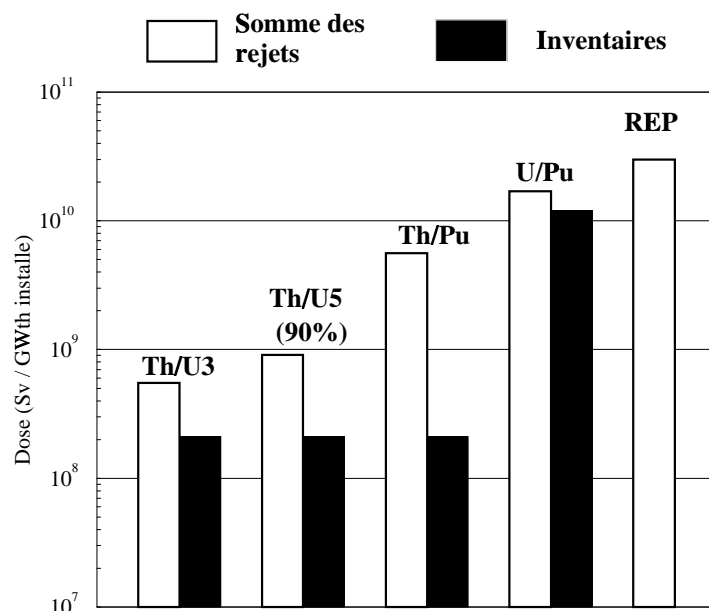


FIG. 5.18 – Comparaison des radiotoxicités des rejets et des inventaires pour le type de recyclage 2, après 200 ans de production d'énergie et 1000 ans de décroissance.

on observe que dans le cas des filières $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$, $^{232}\text{Th} / ^{235}\text{U}$ et $^{\text{nat}}\text{U} / \text{Pu}$, la quasi-totalité de la radiotoxicité est concentrée dans l'inventaire du réacteur ; la somme des rejets effectués ne représentent qu'une faible partie (moins de 10 %). En ce qui concerne la filière $^{232}\text{Th} / \text{Pu}$, la forte radiotoxicité des actinides mineurs lourds (Am et Cm) perdus lors des premiers retraitements est tout à fait significative et conduit à une radiotoxicité des rejets du même ordre de grandeur de celle de l'inventaire. Notons que dans ce type de recyclage poussé, on ne peut pas envisager de réduire la radiotoxicité des rejets, puisqu'il s'agit d'actinides dilués dans les stocks de déchets ; par contre, les actinides présents dans l'inventaire sont concentrés et peuvent être incinérés lors de l'arrêt de la filière. Compte tenu de cette remarque, on peut penser que l'incinération d'un combustible usé issu de la filière $^{232}\text{Th} / \text{Pu}$ n'est pas très intéressante. En effet, si l'on réduit la radiotoxicité de l'inventaire, la radiotoxicité des rejets, que l'on ne peut réduire, deviendra rapidement plus importante. Des études doivent être menées afin d'optimiser le recyclage du système $^{232}\text{Th} / \text{Pu}$ afin de réduire la radiotoxicité des actinides perdus à chaque retraitement.

En ce qui concerne le recyclage de type 2, où seul l'élément fissile principal est recyclé, on observe un comportement différent pour toutes les filières envisagées. En effet, la radiotoxicité de l'inventaire de chaque réacteur ne dépend quasiment pas du type de recyclage effectué ; par contre, la radiotoxicité des actinides rejetés est fortement dépendante du type de retraitement. Pour toutes les filières envisagées, la radiotoxicité des rejets effectués pendant 200 ans de produc-

tion est supérieure à la radiotoxicité de l'inventaire final des réacteurs. Cet effet est spécialement visible pour la filière ^{232}Th / Pu, dont les rejets induisent 50 fois plus de radiotoxicité que l'inventaire final. Il faut cependant noter que les actinides mineurs perdus à chaque retraitement peuvent être séparés des produits de fission et incinérer en parallèle, contrairement au recyclage de type 1. Si l'on compare le système ^{232}Th / Pu au système ^{nat}U / Pu, on observe que le gain se situe principalement au niveau de l'inventaire (facteur 50), la somme des rejets au bout de 200 ans de production d'énergie ne diffère que d'un facteur 3 environ.

Enfin, si l'on compare tous ces systèmes utilisant le multirecyclage du combustible à un scénario comprenant des réacteurs de type REP sans recyclage du combustible, on observe que seule la filière thorium apporte un avantage significatif, et ce, quelque soit le type de recyclage envisagé. La filière ^{nat}U / Pu permet de réduire d'un facteur 2 à 3 seulement la radiotoxicité globale ; cependant un retraitement de type 1 permet de concentrer la radiotoxicité dans l'inventaire, ce qui représente un volume de déchets 60 fois inférieur environ à un scénario utilisant des réacteurs REP sans recyclage.

Nous n'avons pas tenu compte jusqu'à maintenant de l'incinération des divers déchets générés par chacune des filières. On peut en effet envisager l'incinération des actinides, soit présents dans les inventaires des réacteurs lors de l'arrêt de la filière, soit perdus lors d'un recyclage de type 2. L'utilisation de réacteurs REP peut également s'accompagner de l'incinération des inventaires rejetés régulièrement. Pour toutes ces raisons, il paraît important d'étudier la possibilité d'incinérer les actinides produits par chacune des filières. Nous présentons dans le chapitre suivant les études que nous avons menées sur le pouvoir transmutateur des réacteurs hybrides au plomb en utilisant du bore pour maintenir la réactivité constante sur quelques années d'irradiation.

Chapitre 6

Incinération d'actinides dans des réacteurs hybrides à spectre rapide

6.1 Considérations générales

Comme nous l'avons vu, l'étude de l'incinération de combustibles issus de différentes filières est incontournable si l'on veut définir toutes les caractéristiques de chacun des scénarios envisageables.

En ce qui concerne la production d'énergie, les réacteurs actuels utilisent un spectre thermique ; si l'on veut passer à une filière régénératrice, pour subvenir à la pénurie d' ^{235}U , le spectre rapide est favorable puisqu'il permet de régénérer la matière fissile tout en limitant l'effet d'empoisonnement dû aux produits de fission. Si l'on considère maintenant un réacteur dédié à l'incinération d'actinides, le type de spectre à utiliser est encore discuté.

Aucune voie n'est actuellement privilégiée en ce qui concerne la destruction d'actinides. De nombreuses propositions ont été faites dans le but de réduire le stock de plutonium issu de l'industrie nucléaire. Nous étudions dans ce travail la possibilité d'utiliser des réacteurs hybrides refroidis au plomb pour incinérer le plutonium et plus généralement les actinides issus d'un combustible usé des filières uranium ou thorium. Avant de justifier l'intérêt porté au réacteur sous-critique à spectre rapide, nous tentons d'exposer les caractéristiques générales de l'incinération d'actinides dans un spectre thermique.

La première possibilité serait d'utiliser les réacteurs actuels de type REP pour incinérer et stabiliser le stock de plutonium de l'industrie nucléaire. Des études ont montré qu'il était possible de brûler plus de plutonium que ce qui est produit par capture sur l' ^{238}U [47]. Les principales caractéristiques des REP resteraient inchangées, les barreaux de plutonium devant cependant être de forme annulaire pour des raisons d'évacuation de chaleur supplémentaire. Un tel système serait capable d'incinérer 94 kg de plutonium par TWhe dans les barreaux spéciaux prévus à

cet effet. Des tels systèmes permettent de réduire globalement le stock actuel de plutonium à raison de 76.5 kg/TWhe. Une des caractéristiques du spectre thermique est cependant de favoriser les captures sur les noyaux fissiles, ainsi, la production d'actinides mineurs (Am et Cm principalement) par capture (n,γ) sur les noyaux de plutonium est importante. La production d'actinides mineurs passe de 2.7 kg/TWhe dans un réacteur REP classique à 9 kg/TWhe environ dans ce type de système.

Les mêmes remarques peuvent s'appliquer à un réacteur hybride à spectre thermique comme le concept développé par C.D. Bowman [48]. Il s'agit d'un réacteur sous critique dans lequel le combustible est sous forme de sel fondu (fluorure) directement dilué dans le caloporteur. Les neutrons sont créés par une cible de spallation en plomb située au centre du réacteur, puis ralentis dans du graphite. Le sel de combustible circule dans ces éléments de graphite. L'intérêt d'un tel système est d'atteindre des haut flux neutroniques (environ 10^{16} n/cm²/s) dans les zones combustibles, et d'optimiser ainsi la vitesse de consommation des actinides. L'originalité d'un tel système tient dans le fait que le circuit de sel fondu contient une branche qui sort du cœur du réacteur. Ceci permet de retirer en continu une partie du combustible qui est en train d'être incinéré et de le remplacer par un combustible plus riche en noyau fissile, dans le but de maintenir une réactivité constante sur une période de plusieurs années.

L'utilisation d'un spectre thermique pour l'incinération d'actinides présente clairement plusieurs avantages, comme le fait d'utiliser des réacteurs existants dans le cas de la proposition de Puill et al. [47], ou d'optimiser la vitesse de consommation du plutonium dans la proposition de C.D. Bowman. L'inconvénient majeur de ce type de spectre est la production massive d'américium et de curium, qui, nous l'avons vu précédemment, sont responsables d'une forte radiotoxicité. Le spectre rapide est une voie à explorer si l'on veut minimiser la production d'actinides mineurs lors de l'incinération de combustibles usés de différentes filières [49].

Nous tentons dans ce chapitre de déterminer les caractéristiques que devrait avoir un réacteur hybride refroidi au plomb dédié à l'incinération de combustible usé. Nous nous plaçons dans l'optique de réduction de radiotoxicité, plus que dans l'optique de dénaturation rapide d'un stock de plutonium ; nous serons donc amenés à choisir un système qui minimise les captures neutroniques sur les noyaux d'actinides, qu'ils soient ou non fissiles.

6.2 Incinération de combustibles usés par des réacteurs hybrides refroidis au plomb

6.2.1 Description générale des simulations

Une simulation d'incinérateur est nécessaire à l'étude complète d'une filière, comprenant donc l'éventualité de son arrêt. Cependant, le large éventail de possibilités envisageables né-

cessiterait des études approfondies et comparatives des divers systèmes susceptibles d’incinérer efficacement des combustibles usés. Le travail commencé sur les incinérateurs appellera donc un approfondissement, relativement découplé de l’étude de filières, qui est l’objet principal de ce travail de thèse.

La géométrie des systèmes que nous simulons est celle décrite au chapitre précédent. La différence principale avec les réacteurs décrits précédemment qui étaient dédiés à la production d’énergie est l’absence de matière fertile et donc de régénération du matériau fissile.

Cette absence de matière fertile est indispensable si l’on veut optimiser la réduction d’un inventaire en fin de cycle. Nous désignerons donc par le terme général “combustible usé” les actinides d’un stock de combustible en fin de cycle excepté l’élément fertile de la filière considérée. D’après les résultats que nous avons exposés précédemment, la radiotoxicité induite par l’élément fertile de chaque filière est nettement dominée par celle des autres éléments présents, qu’il s’agisse de la filière thorium ou uranium (cf figures 4.21 et 4.22).

De tels combustibles nécessitent l’utilisation d’un système sous-critique du fait de la faible proportions de neutrons retardés produits par les noyaux présents dans le cœur.

L’absence de matrice fertile interdit cependant tout maintien de réactivité par régénération adéquate de matériau fissile, comme il en est question dans les réacteurs dédiés à la production d’énergie. De plus, l’absorption totale du combustible diminue fortement du fait de l’absence de matrice fertile qui représentait dans les cas précédents la majeure partie du combustible. Cette forte diminution de l’absorption doit être compensée si l’on veut garder un réacteur de taille (et donc de puissance) raisonnable. Diverses solutions peuvent être suggérées, comme l’utilisation de poisons consommateurs de neutrons, ou la dilution du combustible dans une matrice inerte (fer, nickel, etc...). Les choix possibles sont multiples et nous avons dû faire de fortes sélections afin de définir le principe général de l’incinérateur utilisé dans notre étude de scénario. Nous tentons ici d’argumenter les choix qui ont été faits, tout en restant conscients qu’une étude plus poussée sur ce type de système permettrait sans nul doute d’optimiser l’incinération des combustibles usés. Néanmoins, les résultats obtenus correspondent à une configuration tout à fait réaliste et déjà efficace.

6.2.2 Composition du cœur

Nous avons choisi d’utiliser du bore sous forme de B_4C mélangé au combustible, qui jouera le rôle de poison consommable dans le réacteur. Le bore naturel utilisé est composé de 19.9% de ^{10}B et de 80.1% de ^{11}B ; la consommation de neutrons par le B_4C provient des réactions (n, α) sur les noyaux de ^{10}B , produisant du 7Li . De plus, nous utiliserons une matrice inerte de fer dans les aiguilles de combustible, afin de diluer les noyaux fissiles présents.

Le premier intérêt d’utiliser du bore dans le réacteur et la possibilité d’ajuster la réactivité qui tend à chuter du fait de la rapide disparition des noyaux fissiles. En effet, on peut envisager des

procédures d'ajustement de réactivité qui consistent à remplacer périodiquement une certaine proportion de bore du cœur par le même volume de matrice inerte. Ces manipulations auront pour effet de diminuer l'absorption dans le cœur et d'augmenter ainsi les chances pour un neutron de créer une fission. Les barres de B_4C qui doivent être retirées ne sont pas des barres de pilotage du réacteur mais des barres d'ajustement de réactivité dont le mouvement ne pourrait s'effectuer que lors d'une procédure bien déterminée et seulement quelques fois par an.

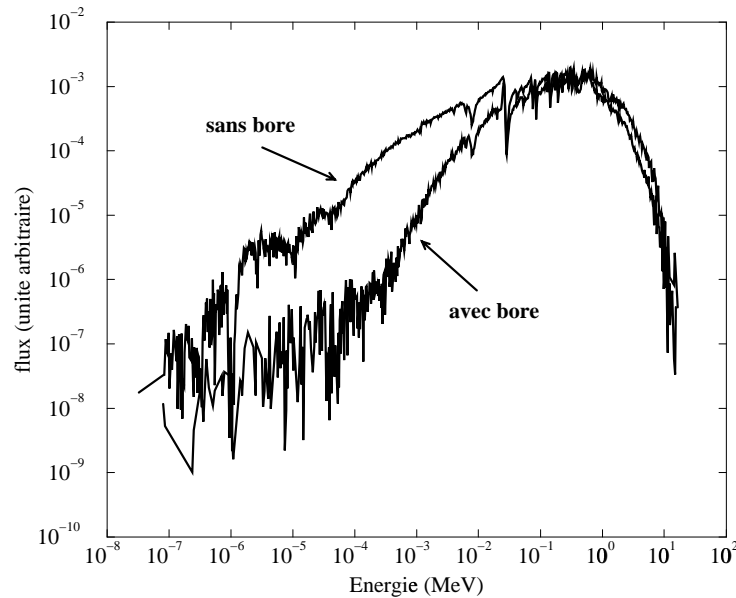


FIG. 6.1 – Comparaison des spectres neutroniques d'un cœur de réacteur en présence ou non de bore.

D'autre part, l'utilisation du bore dans le cœur du réacteur permet d'obtenir un spectre de neutrons très rapides du fait de sa forte section efficace de capture (n, α) aux basses énergies. Les fissions des noyaux lourds sont ainsi favorisées par rapport aux captures (n, γ) parasites sur ces mêmes noyaux, responsables de la production d'éléments lourds très radioactifs. La figure 6.1 montre la forme des spectres obtenus dans des réacteurs contenant ou non du bore, l'effet sur les sections efficaces moyennes de fission et de capture de tous les noyaux du cycle étant représentée dans le tableau 6.1.

On observe que dans la plupart des cas, on favorise grandement la fission des noyaux lourds en utilisant un cœur contenant du bore. Cet effet est évidemment beaucoup plus sensible sur les noyaux dont la section efficace de fission possède un seuil ; c'est le cas par exemple des isotopes du plutonium 240 et 242, sources importantes d'actinides mineurs par capture (n, γ) et qui voient passer leur proportion de fission d'environ 20 % dans un réacteur sans bore à plus de 50

Type	Avec bore			Sans bore		
	σ^{cap}	σ^{fis}	$\frac{\sigma^{fis}}{\sigma^{cap} + \sigma^{fis}}$	σ^{cap}	σ^{fis}	$\frac{\sigma^{fis}}{\sigma^{cap} + \sigma^{fis}}$
^{237}Np	1.02	0.46	0.31	2.68	0.24	0.08
^{238}Pu	0.50	1.21	0.71	1.31	1.18	0.47
^{239}Pu	0.28	1.66	0.86	0.98	2.35	0.71
^{240}Pu	0.33	0.50	0.60	1.00	0.29	0.22
^{241}Pu	0.27	2.08	0.89	0.72	3.62	0.83
^{242}Pu	0.29	0.37	0.56	0.93	0.18	0.16
^{241}Am	1.12	0.37	0.25	2.90	0.19	0.06
^{242}Am	0.22	3.12	0.93	0.85	6.65	0.89
^{243}Am	0.96	0.29	0.23	2.78	0.14	0.05
^{242}Cm	0.17	0.21	0.55	0.75	0.10	0.12
^{243}Cm	0.14	2.19	0.94	0.56	4.56	0.89
^{244}Cm	0.58	0.59	.51	1.50	0.34	0.18
^{245}Cm	0.22	1.92	0.90	0.50	3.80	0.88
^{246}Cm	0.15	0.38	0.72	0.49	0.18	0.27

TAB. 6.1 – *Effet du bore sur les sections efficaces moyennes des noyaux importants dans le cycle d'incinération du plutonium.*

% avec.

La possibilité d'ajuster la réactivité et la minimisation des captures (n, γ) sur les noyaux de combustible sont les deux facteurs qui nous ont poussés vers l'étude d'incinérateurs basés sur l'utilisation de bore dans le combustible.

La dilution des noyaux de combustible dans les aiguilles de combustible est directement liée à la vitesse de consommation du combustible que l'on veut obtenir. En effet, la densité de puissance moyenne étant fixée pour des raisons d'évacuation de chaleur, on connaît le nombre de fissions par unité de volume et unité de temps dans le réacteur. Le temps de demi-vie souhaité est relié à ce taux de fission par la relation :

$$n_{comb} = 2 \frac{p_s}{\varepsilon_f} T_{1/2} \quad (6.1)$$

avec :

- n_{comb} le nombre de noyaux de combustible par unité de volume (at/cm^3)
- p_s la puissance spécifique moyenne (330 W/cm^3)
- ε_f l'énergie délivrée par une fission ($200 \text{ MeV} = 3,2 \cdot 10^{11} \text{ J}$)
- $T_{1/2}$ la demi-vie du stock de déchets à brûler

Nous verrons par la suite qu'une durée de vie de 7.5 ans permet d'obtenir une configuration de réacteur raisonnable pour les deux filières. L'application numérique donne alors

$$n_{comb} = 8.10^{-3} \text{ moles/cm}^3$$

Cette concentration étant fixée, il reste à déterminer le nombre d'atomes de bore nécessaire. Deux effets peuvent conduire à fixer cette quantité; d'une part, une certaine quantité minimum initiale est nécessaire afin d'assurer un ajustement de réactivité sur plusieurs années. Inversement, la quantité de bore dans le cœur est limitée par l'absorption neutronique qui en découle; si la quantité de bore est trop importante, une augmentation du volume est nécessaire pour compenser la consommation de neutrons par réaction sur le ^{10}B , ce qui peut conduire à des systèmes de taille et de puissance trop élevées. Nous nous plaçons donc dans la situation où le bore initial permet d'ajuster la réactivité sur une période d'environ 5 ans. Les quantités de bore et de combustible par unité de volume étant fixées, cela fixe la quantité de matrice inerte dans les aiguilles de combustible. Cette composition choisie est représentée dans le tableau 6.2.

6.3 Description des résultats obtenus

Ce paragraphe présente les résultats détaillés des études menées sur l'incinération des actinides issus des filières uranium et thorium décrites précédemment. Les différences de ces deux

Proportion (%)	
Fer	84.5
Bore	8.9
Combustible	6.6

TAB. 6.2 – *Composition atomique des aiguilles de combustible.*

types de combustible utilisé à incinérer conduisent à des caractéristiques initiales et à un comportement du réacteur relativement différents. Nous tentons de mener une étude comparative de ces deux types d’incinération en exposant en parallèle les résultats des simulations.

6.3.1 Caractéristiques initiales

D’après les contraintes fixées au paragraphe précédent, il convient maintenant de fixer la proportion volumique du caloporteur dans le cœur du réacteur et son volume. Les deux types de combustible étudiés ont un comportement différent, en terme de sections efficaces moyennes de fission et de capture, et conduisent à des réacteurs de caractéristiques initiales différentes. Nous avons défini des concentrations volumiques de caloporteur différentes pour les deux types de réacteurs étudiés afin de conserver le même ordre de grandeur et de volume entre les deux filières. La composition isotopique des noyaux fissiles du combustible de la filière uranium est plus homogène que pour la filière thorium, du fait des fortes sections efficaces de capture des noyaux de plutonium comparées à celles des noyaux d’uranium. Ainsi, le mélange isotopique de plutonium issu de la filière uranium possède une section efficace moyenne de fission plus faible que le mélange isotopique d’uranium issu de la filière thorium. Cela conduit à un volume nécessaire beaucoup plus grand dans le cas de la filière uranium. Nous avons choisi de compenser cette augmentation importante de volume du cœur en diminuant la proportion volumique de caloporteur dans la zone multiplicatrice afin d’obtenir des systèmes de taille et de puissance comparables. Les caractéristiques initiales choisies sont représentées dans le tableau 6.3, le détail de la composition de chacun des combustibles étant représenté dans le tableau 6.4.

6.3.2 Comportement du réacteur au cours du temps

Nous choisissons d’ajuster la réactivité tous les 3 mois. L’évolution du facteur de multiplication des deux types d’incinérateur est représentée sur la figure 6.2. Le retrait régulier du ^{10}B est visible sur la figure 6.3. Entre deux ajustements de réactivité, le ^{10}B disparaît par capture (n, α) produisant du ^7Li , cependant la diminution de la section efficace macroscopique d’absorption liée à la consommation du bore ne permet pas de compenser la disparition des noyaux fissiles ; on peut comparer sur cette figure la différence entre la consommation du bore par capture neutronique et le retrait nécessaire au maintien du facteur de multiplication k_s .

	Filière uranium	Filière thorium
Volume	4.5 m ³	4 m ³
Puissance	740 MWth	520 MWth
Masse actinides (oxyde)	4.3 t	3.0 t
Composition volumique	Aiguilles de combustible	50 %
	Plomb	36 %
	Fer (gaines)	10 %
	Vide	4 %
		40 %
		48 %
		9 %
		3 %

TAB. 6.3 – *Caractéristiques générales des réacteurs.*

Filière uranium (pour 100 noyaux de plutonium)	Filière thorium (pour 100 noyaux d'uranium)
²³⁸ Pu 1.7	
²³⁹ Pu 57.6	²³¹ Pa 2.2
²⁴⁰ Pu 31.2	²³² U 2.2
²⁴¹ Pu 3.0	²³³ U 66.4
²⁴² Pu 2.4	²³⁴ U 21.5
²⁴¹ Am 2.5	²³⁵ U 5.9
²⁴² Am 0.05	²³⁶ U 4.3
²⁴³ Am 0.7	²³⁷ Np 0.93
²⁴³ Cm 0.01	²³⁸ Pu 0.62
²⁴⁴ Cm 0.4	²³⁹ Pu .16
²⁴⁵ Cm 0.14	²⁴⁰ Pu 0.06
²⁴⁶ Cm 0.04	

TAB. 6.4 – *Composition initiale du stock d'actinides à brûler.*

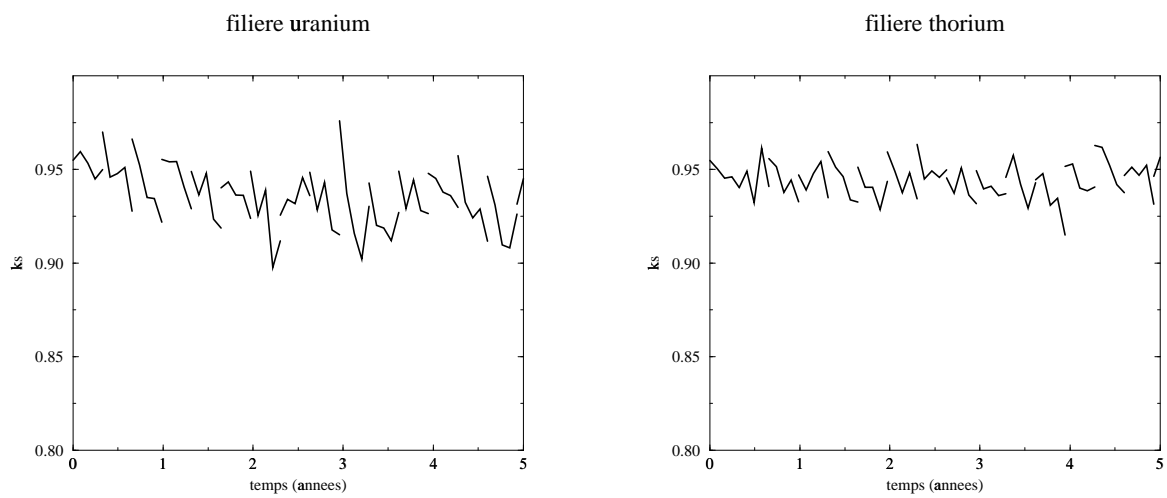


FIG. 6.2 – Evolution du facteur de multiplication k_s avec le temps. Les discontinuités correspondent aux ajustements de réactivité par retrait d'une partie du bore présent dans le cœur.

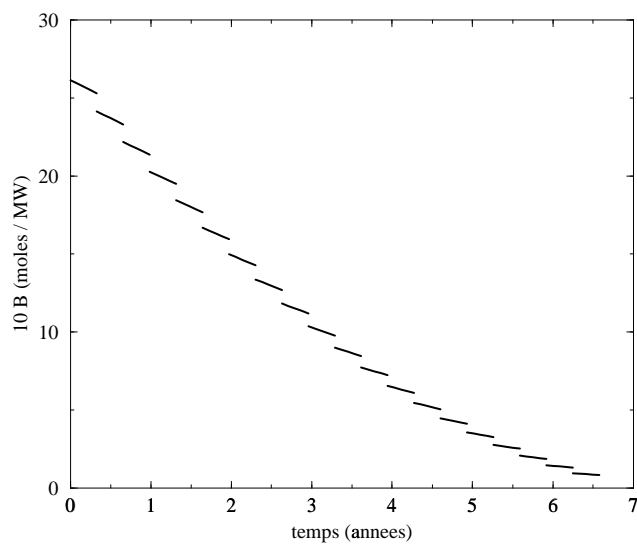


FIG. 6.3 – Evolution du ^{10}B dans l'incinérateur de la filière plutonium.

Le retrait régulier du bore implique une forte variation de la forme du spectre neutronique dans le cœur de l'incinérateur. Au fur et à mesure de l'évolution, le spectre s'adoucit, puisque l'absorption dans les basses énergies diminue fortement. On compare sur la figure 6.4 la forme du spectre neutronique au démarrage du réacteur et 5 ans après.

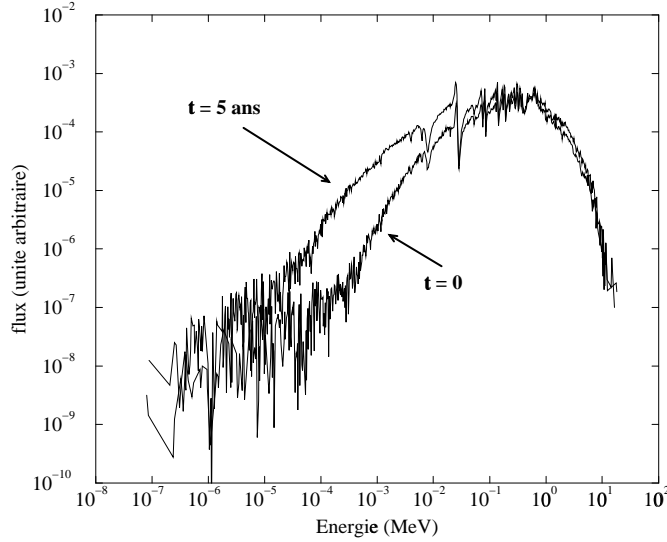


FIG. 6.4 – Evolution de la forme du spectre neutronique entre $t = 0$ et $t = 5$ ans du fait de la disparition du ^{10}B .

Cette modification du spectre est commune aux deux filières et induit une variation significative des section efficaces moyennes des noyaux de combustible. Le tableau 6.5 montre l'évolution des sections efficaces moyennes de fission et de capture (n, γ) pour les principaux noyaux de chacune des filières, ainsi que le rapport $\frac{\sigma^{fis}}{\sigma^{fis} + \sigma^{cap}}$.

La méthode de simulation mise au point permet de prendre en compte cette forte variation des sections efficaces moyennes de chaque noyau. Les temps entre chaque calcul Monte Carlo ont été adaptés comme il a été expliqué au chapitre 3.

Afin de suivre l'évolution de chacun des noyaux présents initialement, il est commode de représenter la quantité $\frac{N_i(t)}{N_i(t=0)}$, les quantités $N_i(t=0)$ étant présentées dans le tableau 6.4. On représente ainsi le taux de consommation ou de production selon les cas pour les noyaux prépondérants. De plus, les études détaillées des radiotoxicités induites par chacune des deux filières conduit à s'intéresser à d'autres noyaux en particulier que les noyaux de combustibles prépondérants. Pour la filière thorium, il s'agit principalement de l' ^{232}U et du ^{238}Pu , en ce qui concerne la filière uranium, il s'agit du ^{244}Cm et de l' ^{241}Am . L'évolution de tous ces noyaux importants par leur quantité ou par la radiotoxicité qu'ils génèrent est représentée sur la figure 6.5.

	filère uranium					
	t = 0			t = 5 ans		
	σ^{cap}	σ^{fis}	$\frac{\sigma^{fis}}{\sigma^{cap} + \sigma^{fis}}$	σ^{cap}	σ^{fis}	$\frac{\sigma^{fis}}{\sigma^{cap} + \sigma^{fis}}$
^{239}Pu	0.28	1.66	0.86	0.62	1.90	0.42
^{240}Pu	0.33	0.50	0.60	0.60	0.33	0.35
^{241}Pu	0.27	2.08	0.89	0.48	2.80	0.85
^{242}Pu	0.29	0.37	0.56	0.57	0.22	0.28
^{241}Am	1.12	0.37	0.25	2.01	0.21	0.09
^{242}Am	0.22	3.12	0.93	0.51	4.63	0.90
^{243}Am	0.96	0.29	0.23	1.78	0.16	0.07
^{244}Cm	0.58	0.59	0.50	1.03	0.36	0.26
	filère thorium					
	t = 0			t = 5 ans		
	σ^{cap}	σ^{fis}	$\frac{\sigma^{fis}}{\sigma^{cap} + \sigma^{fis}}$	σ^{cap}	σ^{fis}	$\frac{\sigma^{fis}}{\sigma^{cap} + \sigma^{fis}}$
^{231}Pa	2.13	0.33	0.13	3.50	0.22	0.06
^{232}U	0.47	2.11	0.82	0.80	2.50	0.76
^{233}U	0.21	2.37	0.92	0.31	3.04	0.91
^{234}U	0.43	0.44	0.51	0.71	0.30	0.30
^{235}U	0.37	1.58	0.81	0.63	2.14	0.77
^{236}U	0.30	0.12	0.29	0.55	0.07	0.11
^{237}Np	1.05	0.44	0.30	1.87	0.28	0.13
^{238}Pu	0.52	1.19	0.70	0.91	1.12	0.55

TAB. 6.5 – Evolution des sections efficaces moyennes de capture et de fission des noyaux importants dans chacun des incinérateurs entre $t = 0$ et $t = 5$ ans.

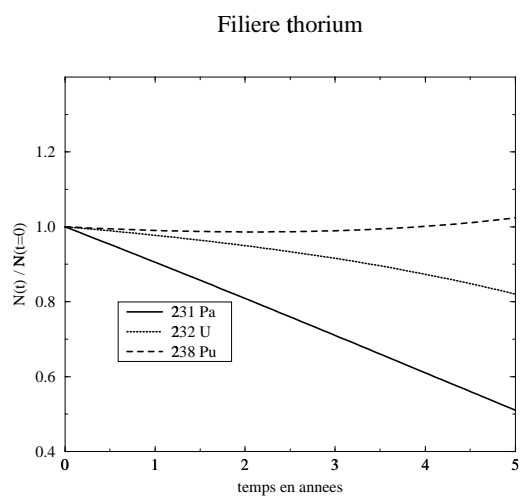
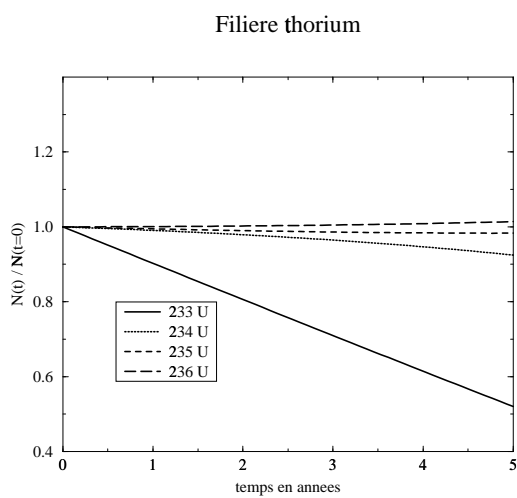
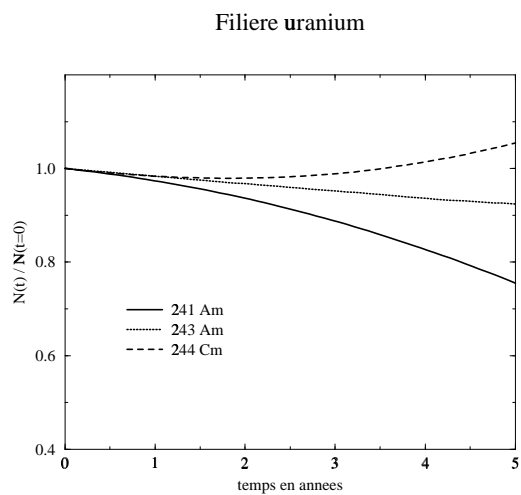
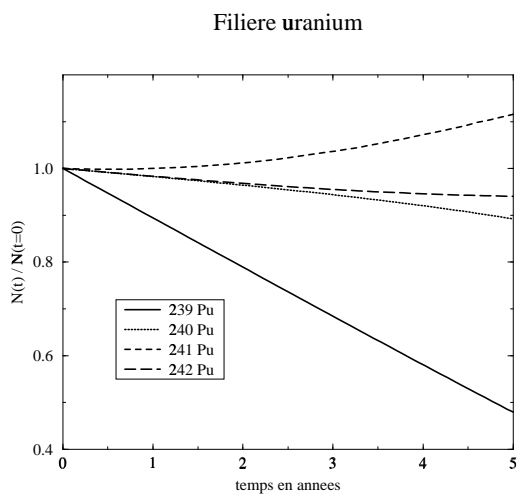


FIG. 6.5 – Evolution du rapport $\frac{N(t)}{N(t=0)}$.

On constate que le stock des noyaux fissiles principaux de chacune des filières (^{239}Pu et ^{233}U) est divisé par un facteur 2 en 5 ans d'irradiation. La plupart des noyaux présents dans le stock initial sont consommés, contrairement au cas thermique où la disparition des noyaux fissiles s'accompagne d'une augmentation d'actinides mineurs. Cependant, la forte dégradation de la forme du spectre neutronique induit une forte variation des sections efficaces de chacun des noyaux, et favorise peu à peu les captures neutroniques par rapport aux fissions (cf tableau 6.5). Cet effet est particulièrement visible sur l'évolution du nombre de noyaux de ^{244}Cm dans la filière uranium et sur le ^{238}Pu dans la filière thorium.

Nous représentons dans le tableau 6.6 le bilan massique des principaux noyaux des deux stocks de déchets à incinérer en normalisant à l'énergie fournie par chacun des réacteurs en 5 ans.

Filière uranium				Filière thorium			
	t = 0	t = 5 ans	bilan		t = 0	t = 5 ans	bilan
	(kg)	(kg)	(kg/(TWth.h))		(kg)	(kg)	(kg/(TWth.h))
^{238}Pu	75	69	-0.19	^{231}Pa	5.5	2.9	-0.11
^{239}Pu	2480	1204	-39.4	^{232}U	5.9	4.8	-0.05
^{240}Pu	1320	1174	-4.5	^{233}U	1990	1032	-42
^{241}Pu	139	156	+0.53	^{234}U	648	599	-2.15
^{242}Pu	105	99	-0.19	^{235}U	154	151	-0.13
^{241}Am	109	83	-0.8	^{236}U	130	131	+0.04
^{243}Am	33	31	-0.06	^{237}Np	28	28	0
^{244}Cm	21	23	+0.06	^{238}Pu	19	19	0
^{245}Cm	7.3	7.0	-0.01	^{239}Pu	5.5	5.6	~ 0

TAB. 6.6 – *Bilan massique en kg des principaux actinides à brûler pour les filières uranium et thorium.*

Ces résultats montrent qu'il est possible d'incinérer les noyaux lourds et de réduire la radio-toxicité d'un stock de combustible utilisé dans un réacteur hybride refroidi au plomb. L'utilisation du bore permet de maintenir la réactivité constante sur plusieurs années moyennant une détérioration du spectre neutronique vers des énergies plus basses. Le procédé de maintien de réactivité est sans doute optimisable ; on peut en effet envisager d'introduire des barres supplémentaires de combustible de façon périodique plutôt que de retirer le bore dont la présence joue un rôle essentiel pour l'incinération des actinides mineurs de chacune des filières. On peut également envisager de retraiter le combustible plus tôt, c'est à dire de le laisser 2 ou 3 ans en réacteur, de retirer les produits de fission et de démarrer un nouveau cycle en ajoutant une quantité de bore adéquate. D'autre part, différents types de matrices inertes peuvent être testés, afin d'obtenir un spectre neutronique le plus favorable possible. Les possibilités sont nombreuses et demandent

des études approfondies, encouragées par les résultats satisfaisants déjà obtenus.

Conclusion

D'une façon assez générale, nous avons tenté dans ce travail de comprendre en quoi les réacteurs hybrides à spectre de neutrons rapides pouvaient être utiles au futur de l'énergie nucléaire.

Notre travail s'est tout d'abord porté sur une approche physique des systèmes sous-critiques ; des études par simulation ont permis de bien comprendre la façon dont se multiplient les neutrons source dans un cœur sous-critique. Un lien a été fait avec les résultats de l'expérience MUSE 3 réalisée à Cadarache. Cette expérience a permis de valider les méthodes de mesure et d'analyse mises au point. La poursuite directe de ce travail expérimental sera effectuée lors de l'expérience MUSE 4 au cours de laquelle le générateur de neutrons GENEPI sera utilisé. Ce générateur, développé à l'ISN, permettra d'obtenir de très bonnes conditions expérimentales (impulsion de neutrons inférieure à $1\ \mu\text{s}$ et absence d'hydrogène dans le cœur du réacteur) qui permettront l'étude détaillée du plomb en tant que cible de spallation et caloporteur, ainsi que de différents combustibles, à base de thorium notamment. Cette démarche expérimentale de vérification des concepts et des méthodes de simulation devraient être complétée par des mesures de sections efficaces auprès de la future installation TOF du CERN.

Ces deux expériences sont la suite logique de l'activité expérimentale de notre groupe engagée dans ce domaine depuis les expériences FEAT et TARC. Elles contribueront à l'amélioration de nos connaissances sur la multiplication neutronique dans les systèmes hybrides et, plus généralement, à améliorer les bases de données nucléaires utilisées par les codes de simulation.

Dans une seconde partie, nous avons entrepris des études par simulation concernant les cycles des combustibles uranium et thorium, ainsi que les phases de transition possibles nécessaires pour aboutir à la filière thorium, qui nécessite un noyau fissile (^{233}U) qui n'existe pas à l'état naturel. Ces études ont été engagées suite à la proposition de C. Rubbia concernant l'utilisation d'un combustible au thorium dans un réacteur sous-critique refroidi au plomb.

L'idée était de définir les caractéristiques principales des filières assurant à l'énergie nucléaire une large pérennité. Cette étude concernant la possibilité d'une énergie nucléaire à long terme nous a paru une étape essentielle dans les travaux menés actuellement concernant la gestion des déchets nucléaires en général. En effet, les décisions qui doivent être prises dans les années à venir nécessitent une bonne connaissance des caractéristiques des filières nucléaires d'avenir.

Ces études ont nécessité le développement d'une méthode de simulation basée sur le couplage entre un code de transport neutronique statique de type Monte Carlo (MCNP) et un programme calculant l'évolution des matériaux. L'étude de chacune des filières a pris en compte différents types de recyclage du combustible.

Les résultats ont montré dans un premier temps les avantages liés à l'utilisation du cycle du $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$ en terme de radiotoxicité induite à chaque retraitement, inférieure d'un facteur 50 environ comparé au cycle $^{nat}\text{U} / \text{Pu}$. Un type de recyclage intermédiaire, concernant uniquement l'uranium et le protactinium, a été proposé afin de minimiser la radiotoxicité générée par les actinides rejetés tout en nécessitant un retraitement chimique simplifié.

Les études de la transition vers le système $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$ ont montré la possibilité d'utiliser le plutonium actuel ou l' ^{235}U naturel. En ce qui concerne l'utilisation du plutonium industriel, on a pu observer les délais imposés par ce type de noyaux avant que la radiotoxicité des rejets ne diminue de façon significative ; pendant près de 50 ans, la radiotoxicité des actinides rejetés est du même ordre de grandeur que celle observée lors de l'utilisation du cycle $^{nat}\text{U} / \text{Pu}$. Ceci est dû à la production importante d'actinides mineurs lourds (^{244}Cm et ^{241}Am principalement) par les noyaux de plutonium. En ce qui concerne l'utilisation de l' ^{235}U naturel, seul un fort enrichissement (90 %) permet de converger vers le système $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$ sans augmentation importante de la radiotoxicité induite par les actinides perdus au retraitement.

Nous avons également pris en compte la radiotoxicité de l'inventaire de chacune des filières après 100 ans d'utilisation, et étudié son incinération en cas d'arrêt du nucléaire. Nous avons pu ainsi déterminer les caractéristiques de réacteurs hybrides à spectre rapide et refroidis au plomb, dédiés à l'incinération d'actinides. Les résultats montrent qu'il est possible de consommer les éléments fissiles principaux des inventaires envisagés (uranium ou plutonium selon les cas) sans augmenter la quantité d'actinides plus lourds créés par capture neutronique sur les noyaux fissiles principaux.

La poursuite de ces travaux sur les réacteurs dédiés à la production d'énergie concerne la sensibilité à divers paramètres, en vue d'obtenir une puissance pour chaque réacteur de l'ordre de 1 GWth. En ce qui concerne l'incinération d'actinides, les résultats encourageants obtenus nous poussent à approfondir l'étude de différentes configurations (géométrie, matrice inerte, poison consommable, etc...) afin d'optimiser les systèmes simulés.

Enfin, un des problèmes importants, qui n'a pas été abordé dans ce travail, est celui de la sûreté. Les avantages liés à la sous-criticité intrinsèque des systèmes hybrides, le niveau de sous-criticité nécessaire et son contrôle doivent être précisément évalués. C'est sans doute une direction de recherche importante à poursuivre, tant par simulation numérique que par des développements expérimentaux.

Bibliographie

- [1] J. Magill. A Short History of Accelerator Driven Systems, <http://itumagill.fzk.de/ADS/history.html>.
- [2] M. Soutif. Physique neutronique, Presse universitaire de France, (1962).
- [3] R. Barjon. Physique des réacteurs nucléaires.
- [4] A.M. Weinberg and Perry. The physical Theory of Neutron Chain Reactors, University of Chicago (1958).
- [5] A. Billebaud et al. Rapport d'expérience MUSE 3, note interne ISN (sous presse).
- [6] J.P. Schapira. Transmutation des radionucléides à vie longue : principes, méthodes, réacteurs, accélérateurs, Cours de DEA Paris XI, Grenoble I, Tours, INSTN.
- [7] D. Heuer et al. Proposal for an accelerator driven subcritical reactor pilot unit, International Conference on Future Nuclear Systems (GLOBAL 97), Yokohama (Japon) Proceedings Vol.1 , 440 (1997).
- [8] L'énergie pour le monde de demain, Ed. Technip (1993).
- [9] D. Bodansky. Nuclar Energy, AIP Press, Woodbury, New York, 1996).
- [10] H. Nifenecker et al. Hybrid nuclear reactors, Progress in Particle and Nuclear Physics (à paraître) (1999).
- [11] J.P. Schapira. Le rôle du cycle du combustible à base de thorium, dans "Les déchets nucléaires", ed. R Turlay (1997).
- [12] C. Rubbia et al. Conceptual design of a fast neutron operated high power energy amplifier, CERN/AT/95-44(ET) (1995).
- [13] W.B. Lewis. The Significance of the Yield of Neutrons from Heavy Nuclei Excited to High Energies, Atomic Energy of Canada Limited Report AECL 968, 1952. .

- [14] J.S. Fraser et al. A Review of Prospects for an Accelerator Breeder, Report AECL-7260, Chalk River Nuclear Laboratories (1981).
- [15] J. S. Gilmore et al. Fertile-to-Fissile and Fission Measurements for Depleted Uranium and Thorium Bombarded by 800-MeV Protons, Nucl. Sci. Engin. 99 (1988) 41-52. .
- [16] K. Furukawa et al. The combined system of accelerator molten salt breeder (AMSB) and molten salt converter reactor (MSCR), Japan-US Seminar on "Thorium fuel reactors", Naora (Japon), Octobre 1982.
- [17] C.D Bowman et al. Nuclear energy generation and waste transmutation using an accelerator-driven intense thermal neutron source, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A320, 336-367 (1992).
- [18] F. Carminati et al. An Energy Amplifier for Cleaner and Inexhaustible Nuclear Energy Production driven by a Particle Beam Accelerator, CERN/AT/93-47 (1994).
- [19] S. Andriamonge et al. Experimental determination of the energy generated in nuclear cascades by a high energy beam, Physics Letters B 348 697-709 (1995).
- [20] F. Attale. Systèmes sous-critiques ; caractérisation et influence de la source de neutrons sur la neutronique du réacteur, Thèse de doctorat (Université Joseph Fourier) ISN 97-40 (1997).
- [21] Collaboration TARC (Porte parole C. Rubbia). Experimental Verification of Neutron Phenomenology in Lead and Transmutation by Adiabatic Resonance Crossing in Accelerator Driven Systems, Physical Review Letters (à parître).
- [22] F. Carminati et al. TARC General Purpose Monte Carlo, CERN/EET/Internal Note 96-011 (1996).
- [23] H. Weigmann. The GEEL program for Neutron Data Measurements from Thermal to 20 MeV, GEDEON Workshop on nuclear data related to innovative options for transmutation, Novembre 1998, Paris.
- [24] C. Rubbia et al. A high resolution spallation driven facility at the CERN-PS to measure neutron cross sections in the interval from 1 ev to 250 MeV, CERN/LHC/98-02(EET) (1998).
- [25] F. Farget et al. Proc. of the Second International Workshop on Nuclear Fission and Fission-Product Spectroscopy, Seyssins, France April 1998.
- [26] J. Cugnon. Nuclear Physics A 462, 751-780 (1987).

- [27] Bertini. PR 131 1801 (1963).
- [28] I. Slypen. LOUVAIN proposals, GEDEON Workshop on nuclear data related to innovative options for transmutation, Novembre 1998, Paris.
- [29] A.J. Koning et al. High Energy Nuclear Data Files From ENDF-6 to NJOY to MCNP, Nuclear Science Committee, NEA/NSC/DOC(97)8, (1997).
- [30] S. Leray. Physical aspects of neutron production and related nuclear data, Ecole de physique des Houches, *Innovative options in the field of nuclear fission energy*, Avril 1998, Les Houches.
- [31] M.B. Chadwick. Cross Section Evaluations to 150 MeV for Accelerator-Driven Systems and Implementation in MCNPX, Los Alamos report LA-UR-98-1825.
- [32] E. Belle. Caractérisation du transport de neutrons de spallation dans un grand volume de plomb, mesures de flux et de taux de transmutation différentiels, Thèse de doctorat (Université Joseph Fourier) ISN 98-71 (1998).
- [33] J. Blachot et al. Status of delayed neutron data, OECD/NEA (1990).
- [34] H. Daniel et al. Subcritical fission reactor driven by the low power accelerator, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 373, 131-134 (1996).
- [35] Application software group, Computing and Network division. GEANT, Detector Description and simulation Tool.
- [36] M. Salvatores et al. The neutronic potential of nuclear power for long-term radioactivity risk reduction, Progress in Nuclear Energy, Vol 32 471-475 (1998).
- [37] A. Tchistiakov. Etude du potentiel de transmutation et des caractéristiques de sûreté d'un système hybride : accélérateur - réacteur sous-critique, Thèse de doctorat (Université de Provence) (1998).
- [38] J.F. Briesmeister. MCNP - A General Monte Carlo N Particle Transport Code, Los Alamos Laboratory report LA-12625-M (1997).
- [39] A. Fassó et al. Intermediate Energy Nuclear Data: Models and Codes, Specialists' Meeting, Issy les Molineaux (France) (1994).
- [40] G. Fioni et al. Transmutation of Am-241 in a high thermal neutron flux American Institute of Physics Conference Series 447(1998)43-51.
- [41] S. Atzeni. Statistical fluctuations in Monte Carlo Simulations of a subcritical system, CERN/LHC/97-12(EET) (1997).

- [42] M. Salvatores et A. Zaetta. Transmutation : physique et stratégie, dans "Les déchets nucléaires", ed. R Turley (1997).
- [43] G.S. Bauer. Some Important Technical Issues Related to Accelerator Driven Systems, Ecole de physique des Houches, *Innovative options in the field of nuclear fission energy*, Avril 1998, Les Houches.
- [44] Plutonium Free Uranium Fuel in PWR Concepts : Neutronic Aspects. M. Delpech, A. Puill, International Conference on Future Nuclear Systems (GLOBAL 97), Yokohama (Japon) Proceedings Vol.1 , 372 (1997).
- [45] T.H .Pigford. Specific features of thorium cycles as compared to uranium cycles, Ecole de physique des Houches, *Innovative options in the field of nuclear fission energy*, Avril 1998, Les Houches.
- [46] Le cycle du thorium, Clefs CEA 38 (1998).
- [47] A. Puill and J. Bergeron. Advanced plutonium fuel assembly : an advanced concept for using plutonium in pressurized water reactors, Nucl. Technology vol. 119 (1997).
- [48] C.D. Bowman. Once-Through Thermal-Spectrum Accelerator-Driven System for LWR Waste Destruction Without Reprocessing: Tier-1 Description, ADNA/98-04 (1998).
- [49] F. Lelièvre. Stratégies pour l'incinération de déchets nucléaires dans des réacteurs hybrides, Thèse de doctorat, université PARIS XI Orsay.

Table des figures

1.1	Radiotoxicité par ingestion du stock de combustible sortant d'un REP après une énergie fournie de 3.37 GWe.an [12]	13
2.1	Géométrie du système "sphère + coquille" de plutonium	29
2.2	Evolution des facteurs de multiplication k_i en fonction du numéro de génération pour le système "sphère+coquille" de plutonium.	31
2.3	Distribution des fissions une fois la source stabilisée.	32
2.4	Géométrie de MASURCA en représentation cylindrique utilisée pour les simulations.	35
2.5	Evolution des distributions spatiales de deux sources de fissions spontanées, l'une centrée, l'autre répartie uniformément dans le cœur	36
2.6	Comparaison de l'évolution des facteurs de multiplication k_i du réacteur MASURCA, pour une source de fission centrée, et une source de fission répartie uniformément sur la zone fissile, en fonction du numéro de génération	37
2.7	Comparaison des facteurs de multiplication k_i de MASURCA pour une source de fission scentrée et la source de neutrons de 14MeV du générateur SODERN (centrée également)	38
2.8	Spectres en temps simulés des neutrons pour différentes valeurs du facteur de multiplication k_s	39
2.9	Comparaison du spectre en temps total des neutrons au spectre des neutrons source pour un facteur de multiplication $k_s = 0.97$	40
2.10	Forme supposée du pulse de neutrons émis par le générateur SODERN	41
2.11	Comparaison du spectre en temps du réacteur soumis à un pulse δ , et à différentes impulsion de largeur à mi-hauteur 0.3, 3, et 4.5 μs	41
2.12	Spectre en énergie pour différents intervalles de temps après une impulsion δ de neutrons source.	42
2.13	Caractéristiques principales du générateur de neutrons GENIE-26 utilisé pour l'expérience MUSE 3.	43
2.14	Spectre en énergie des neutrons sortant du générateur SODERN.	44
2.15	Effet du générateur de neutrons SODERN sur les spectres en temps des neutrons.	44

2.16	Illustration du modèle qualitatif expliquant l'effet de l'huile du générateur SO-DERN sur la forme des spectres en temps simulés dans le cœur du réacteur.	45
2.17	Exemple de spectres en temps mesurés lors de l'expérience MUSE 3	46
2.18	Comparaison des spectres en temps expérimentaux et simulés pour des réactivités comparables.	47
2.19	Comparaison des spectres en énergie avec et sans générateur de neutrons, dans la zone modératrice en plomb, et au centre de la zone fissile ; pour la zone centrale du cœur, le spectre "avec générateur" est multiplié par 10 pour permettre la distinction entre les deux spectres.	48
2.20	Description du compteur proportionnel à ^3He utilisé pour l'expérience MUSE 3.	49
2.21	Comparaison du spectre en énergie expérimental et du spectre simulé convolué par la réponse du détecteur ^3He ; l'énergie du neutron est donnée par soustraction de 764 keV à l'énergie mesurée.	50
2.22	Spectre brut simulé par MCNP représenté en échelle linéaire en énergie.	50
3.1	Description de la géométrie générale utilisée lors des simulations	58
3.2	Spectre en énergie et distribution spatiale selon l'axe de la cible, de la source de neutrons utilisée.	59
3.3	Description des aiguilles de combustible qui pavent la zone multiplicatrice (la proportion de caloporteur est de 50 %)	59
3.4	Comportement du facteur de multiplication en fonction de la hauteur du cœur pour un volume V fixé (3 m^3).	61
3.5	Evolution du facteur de multiplication k_s en fonction de l'épaisseur du réflecteur pour différents volumes de zone multiplicatrice.	62
3.6	Distribution en masse des produits de fission des noyaux ^{233}U et ^{239}Pu 100 jours après leur création.	64
3.7	Sections efficaces moyennes de capture (n, γ) des produits de fission en fonction de leur masse ; on repère les produits de fission apparaissant en quantité importante pour les deux noyaux fissiles considérés ^{233}U et ^{239}Pu	65
3.8	Evolution de la section efficace moyenne de capture (n, γ) des produits de fission de ^{233}U et du ^{239}Pu créés à l'instant $t = 0$ dans un flux neutronique rapide.	65
3.9	Comparaison de l'évolution du ^{239}Pu et du ^{244}Cm avec ou sans calcul Monte Carlo intermédiaire ; les erreurs de type (a) correspondent à la dispersion des calculs sans simulation Monte Carlo intermédiaire ; les erreurs de type (b) correspondent à la différence moyenne observée entre le nombre de noyaux calculé avec ou sans calcul Monte Carlo intermédiaire.	71

3.10	Evolution des sections efficaces moyennes de fission du ^{239}Pu et de capture de l' ^{238}U , due à l'apparition de produits de fission dans le cœur.	72
3.11	Evolution du ^{239}Pu et du ^{244}Cm pour un système incinérateur comprenant un quantité importante de bore.	73
3.12	Evolution des sections efficaces de fission et de capture du ^{239}Pu due à la disparition progressive du bore dans le cœur.	74
3.13	Fluctuations statistiques observées sur l'évolution du facteur de multiplication k_s	74
4.1	Schéma des possibilités d'aboutir aux deux filières nucléaires uranium et thorium.	80
4.2	Paramétrisation du facteur de multiplication k_s à l'aide de l'équation 4.3 pour le système $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$ en fonction du volume du cœur et pour différentes concentrations en ^{233}U	83
4.3	Effet des produits de fission sur l'évolution du facteur de multiplication paramétrisé selon la relation 4.13. Deux valeurs de sections efficaces moyennes de produits de fission sont utilisées, correspondant aux valeurs déterminées précédemment pour les produits de fission issus de l' ^{233}U ou du ^{239}Pu	86
4.4	Exemples d'évolution du facteur de multiplication pour les filière thorium et uranium, pour différentes concentrations en noyaux fissiles (le volume est adapté pour obtenir le bon facteur de multiplication initial).	88
4.5	Variation de la réactivité $\frac{dk_s}{dt}$ en fonction de la concentration en noyaux fissiles pour la filière uranium et thorium.	88
4.6	Evolution sur 25 ans de la réactivité du réacteur de la filière thorium et du rapport $\frac{N_{233\text{U}}(t)}{N_{233\text{U}}(t=0)}$	90
4.7	Comparaison des facteurs de forme.	90
4.8	Spectres moyens dans les cœurs des réacteurs correspondant au deux filières thorium et uranium.	94
4.9	Représentation du rapport entre les spectres de neutron des filières thorium et uranium. Comparaison avec les sections efficaces différentielles de fission des deux noyaux fissiles prépondérants dans chacun des deux cas.	95
4.10	Taux de réaction différentiel (par unité de léthargie) de l' ^{238}U et du ^{239}Pu pour la filière uranium, de l' ^{233}U et du ^{232}Th pour la filière thorium	96
4.11	Les différents types de recyclage envisagés.	98
4.12	Comportement des sections efficaces de fission du ^{239}Pu et de l' ^{238}U dans la filière $^{nat}\text{U} / \text{Pu}$ en fonction du facteur de multiplication k_s	100
4.13	Evolution de la réactivité avec le temps pour les filières uranium et thorium.	100
4.14	Evolution des noyaux les plus abondants dans la filière $^{nat}\text{U} / \text{Pu}$ lors du fonctionnement du réacteur et du refroidissement du combustible.	102

4.15	Evolution des noyaux les plus abondants dans la filière ^{232}Th / ^{233}U lors du fonctionnement du réacteur et du refroidissement du combustible.	103
4.16	Comparaison de l'évolution du stock au déchargement, des différents isotopes du thorium, protactinium et uranium dans les deux filières étudiées.	105
4.17	Comparaison de l'évolution du stock au déchargement, des différents isotopes du neptunium et du plutonium dans les deux filières étudiées.	106
4.18	Comparaison de l'évolution du stock au déchargement, des différents isotopes d'américium et de curium dans les deux filières étudiées.	107
4.19	Evolution du flux neutronique dans les réacteurs utilisant les filières uranium et thorium.	108
4.20	Comparaison des radiotoxicités des actinides perdus au $5^{\text{ème}}$ et au $20^{\text{ème}}$ retraitement lors d'un recyclage de type 1.	109
4.21	Détail de la radiotoxicité des actinides perdus au $5^{\text{ème}}$ et $20^{\text{ème}}$ retraitement de la filière thorium.	109
4.22	Détail de la radiotoxicité des actinides perdus au $5^{\text{ème}}$ retraitement de la filière uranium (la décomposition est identique pour le $20^{\text{ème}}$ retraitement).	110
4.23	Evolution de la radiotoxicité en fonction du numéro de recyclage (chaque recyclage comprend 5 ans en réacteur et 5 ans de refroidissement) à différents temps suivant le recyclage du combustible.	111
4.24	Détail des radiotoxicités des actinides perdus lors du $20^{\text{ème}}$ recyclage de type 2 pour chacune des filières.	112
4.25	Evolution de la radiotoxicité des actinides perdus au retraitement pour les deux filières en fonction du numéro du recyclage et pour différents temps suivant chaque recyclage.	113
4.26	Comparaison des deux types de recyclage envisagés pour la filière thorium et d'un recyclage intermédiaire ne prenant en compte que l'uranium et le protactinium. .	114
5.1	Evolution de la concentration en ^{233}U par rapport au ^{232}Th en fonction du temps.	117
5.2	Evolution du facteur de multiplication k_s en fonction du temps à intensité de faisceau fixée à 20 mA.	118
5.3	Evolution de la puissance du réacteur en fonction du temps à intensité de faisceau fixée à 20 mA.	118
5.4	Evolution du nombre de noyaux d' ^{232}U , ^{233}U , ^{235}U et de ^{238}Pu pour différents enrichissements initiaux en ^{235}U et pour le système ^{232}Th / ^{233}U	121
5.5	Evolution du nombre de noyaux de ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Am et de ^{244}Cm pour différents enrichissements initiaux en ^{235}U et pour le système ^{232}Th / ^{233}U	122

5.6	Evolution de la section efficace de fission moyennée sur les trois principaux noyaux fissiles du système et sections efficaces partielles de fission de chacun de ces noyaux $\frac{\sigma_i N_i}{N_{235\text{U}} + N_{233\text{U}} + N_{239\text{Pu}}}$ pour deux enrichissements en ^{235}U (33 % et 90 %) . . .	123
5.7	Valeur intégrée du flux en fonction du temps passés en réacteur pour un enrichissement initial en ^{235}U de 90 %.	124
5.8	Détail de la radiotoxicité des actinides perdus au $5^{\text{ème}}$ retraitement pour différents enrichissements initiaux en ^{235}U	125
5.9	Evolution de la radiotoxicité en fonction du numéro de recyclage et de l'enrichissement initial en ^{235}U	126
5.10	Evolution du nombre de noyaux de ^{239}Pu , ^{241}Am et ^{244}Cm dans les cycles $^{232}\text{Th} / \text{Pu}$ et $^{232}\text{Th} / ^{233}\text{U}$	128
5.11	Evolution de la section efficace de fission moyennée sur les trois noyaux fissiles prépondérants et évolution de la section efficace partielle de chacun de ces noyaux $\frac{\sigma_i N_i}{N_{239\text{Pu}} + N_{241\text{Pu}} + N_{233\text{U}}}$	128
5.12	Evolution du flux intégré dans la filière $^{232}\text{Th} / \text{Pu}$ en fonction du temps passé en réacteur.	129
5.13	Détail de la radiotoxicité des actinides perdus au $5^{\text{ème}}$ et $20^{\text{ème}}$ recyclage.	130
5.14	Comportement de la radiotoxicité des actinides perdus au retraitement en fonction du numéro de recyclage pour différents temps suivant le recyclage.	130
5.15	Comparaison globale des radiotoxicités des actinides perdus lors d'un recyclage poussé de type 1 en fonction du numéro du recyclage.	132
5.16	Comparaison globale des radiotoxicités des actinides perdus lors d'un recyclage poussé de type 2 en fonction du numéro du recyclage.	133
5.17	Comparaison des radiotoxicités des rejets et des inventaires pour le type de recyclage 1, après 200 ans de production d'énergie et 1000 ans de décroissance.	134
5.18	Comparaison des radiotoxicités des rejets et des inventaires pour le type de recyclage 2, après 200 ans de production d'énergie et 1000 ans de décroissance.	135
6.1	Comparaison des spectres neutroniques d'un cœur de réacteur en présence ou non de bore.	140
6.2	Evolution du facteur de multiplication k_s avec le temps. Les discontinuités correspondent aux ajustements de réactivité par retrait d'une partie du bore présent dans le cœur.	145
6.3	Evolution du ^{10}B dans l'incinérateur de la filière plutonium.	145
6.4	Evolution de la forme du spectre neutronique entre $t = 0$ et $t = 5$ ans du fait de la disparition du ^{10}B	146
6.5	Evolution du rapport $\frac{N(t)}{N(t=0)}$	148

Liste des tableaux

1.1	Production d'énergie dans le monde en pourcentage et en "Giga Tonnes équivalent pétrole" (G Tep)	7
1.2	Réserves en énergie fossile et nucléaire exprimées en années d'exploitation au taux actuel de consommation	8
1.3	Liste des principaux produits de fission à vie longue, ainsi que leur période de décroissance et leur taux de production actuel par un réacteur REP de 1 GWe [10]	10
1.4	Inventaire d'un REP au bout d'un an de fonctionnement à 1 GWe [11] (soit environ 9 TWhe)	12
2.1	Composition isotopique du plutonium issu d'un réacteur de type REP	20
2.2	Proportion des neutrons retardés pour les principaux noyaux définissant le comportement d'un réacteur [10, 33]	22
2.3	Calcul du gain neutronique d'un système sous critique	28
2.4	Facteurs de multiplication du système "sphère+coquille" et de chacun des sous-systèmes.	30
2.5	Facteurs de multiplication de MASURCA simulés dans les conditions de l'expérience MUSE 3	38
3.1	Valeur des sections efficaces moyennes déterminées à partir de la librairie JEF2.2 pour l' ^{233}U et le ^{239}Pu	64
3.2	Caractéristiques du système choisi pour illustrer la propagation des différentes erreurs lors du couplage de MCNP à un code d'évolution.	70
4.1	Paramétrisation du facteur de multiplication initial pour les systèmes ^{232}Th / ^{233}U et ^{nat}U / Pu	83
4.2	Caractéristiques initiales des réacteur correspondant à chaque filière définies à partir de $k_s = cte$ et $k_{s0} \sim 0.98$	89
4.3	Bilan neutronique détaillé du réacteur de la filière thorium.	91
4.4	Bilan neutronique détaillé du réacteur utilisé de la filière uranium.	92

4.5	Comparaison des sections efficaces moyennes de fission et de capture (n, γ) des noyaux entrant dans le cycle de chacune des filières à l'instant initial.	93
5.1	Caractéristiques principales du système au thorium étudié.	116
5.2	Bilan énergétique du système thorium et production d' ^{233}U par l'irradiation de thorium par un faisceau de protons de 1 GeV d'intensité 20 mA.	119
5.3	Caractéristiques initiales du réacteur utilisé pour l'étude du système $^{232}\text{Th} / ^{235}\text{U}$. 120	
5.4	Caractéristiques initiales du réacteur utilisé pour l'étude du système $^{232}\text{Th} / \text{Pu}$. 127	
6.1	Effet du bore sur les sections efficaces moyennes des noyaux importants dans le cycle d'incinération du plutonium.	141
6.2	Composition atomique des aiguilles de combustible.	143
6.3	Caractéristiques générales des réacteurs.	144
6.4	Composition initiale du stock d'actinides à brûler.	144
6.5	Evolution des sections efficaces moyennes de capture et de fission des noyaux importants dans chacun des incinérateurs entre $t = 0$ et $t = 5$ ans.	147
6.6	Bilan massique en kg des principaux actinides à brûler pour les filières uranium et thorium.	149